



Détection et migration des gaz dans les milieux géologiques : Expériences et simulations au Laboratoire Naturel de Roselend

Sophie Guillon

► To cite this version:

Sophie Guillon. Détection et migration des gaz dans les milieux géologiques : Expériences et simulations au Laboratoire Naturel de Roselend. Sciences de la Terre. Institut de physique du globe de paris - IPGP, 2013. Français. NNT : . tel-00965028

HAL Id: tel-00965028

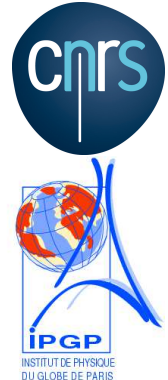
<https://theses.hal.science/tel-00965028>

Submitted on 24 Mar 2014

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

Institut de Physique du Globe de Paris, Sorbonne Paris Cité



THÈSE

Présentée pour obtenir le grade de
Docteur de l'Institut de Physique du Globe de Paris

Spécialité : Géochimie

par

Sophie GUILLON

Détection et migration des gaz dans les milieux géologiques : Expériences et simulations au Laboratoire Naturel de Roselend

Soutenue le 12 Novembre 2013 devant la Commission d'examen :

M.	Pierre AGRINIER	(Co-Directeur de thèse)
M.	Yves CARISTAN	(Examinateur)
M.	Charles CARRIGAN	(Examinateur)
M.	François GUYOT	(Rapporteur)
M.	Édouard KAMINSKI	(Examinateur)
M.	Éric PILI	(Directeur de thèse)
M.	Roland PURTSCHERT	(Rapporteur)

École doctorale des Sciences de la Terre - ED109

Résumé

La migration des gaz dans les roches résulte de processus naturels et artificiels. Sa compréhension intéresse en particulier le Traité d'interdiction complète des essais nucléaires (Tice), afin d'améliorer la détection des explosions nucléaires souterraines par la mesure des gaz radioactifs. Ces travaux s'inscrivent également dans de nombreux domaines des Sciences de la Terre, tant fondamentaux qu'appliqués. Les principaux enjeux de l'amélioration de la détection et de la compréhension de la migration des gaz dans les milieux géologiques sont les suivants : quels sont les moteurs de la migration des gaz d'une source en profondeur vers la surface ? Quelle proportion des gaz produits en profondeur arrive-t-elle en surface ? Cette migration entraîne-t-elle des délais temporels entre la production et l'arrivée en surface ? Pour répondre à ces questions, nous nous sommes attachés dans cette thèse à identifier les mécanismes de transport des gaz dans les roches fracturées, à partir d'expériences en site naturel et de simulations numériques. Le Laboratoire Naturel de Roselend (Savoie) est un cadre privilégié pour l'étude de la migration des gaz en zone non saturée à une échelle représentative des processus naturels. Les paramètres du milieu géologique ainsi que les forçages extérieurs y ont été déterminés. Un tunnel et une chambre isolée, à 55 m de profondeur, ainsi que de nombreux forages, en profondeur et en surface, permettent de mesurer les gaz présents au cœur de la roche. Les propriétés pneumatiques du milieu, perméabilité et porosité, ont été déterminées à des échelles allant de 1 m à 55 m à partir de tests d'injection pneumatique et de mesures des fluctuations de pression, ainsi que de modélisations numériques de l'écoulement des fluides dans les milieux poreux. Une approche de modèle inverse a permis en outre d'estimer les incertitudes associées. Les résultats soulignent la forte hétérogénéité spatiale du milieu fracturé. La dynamique naturelle de trois gaz, CO_2 , SF_6 et ^{222}Rn , a été mesurée en continu pendant plus d'un an. Les résultats, interprétés à l'aide de modélisations numériques, ont mis en évidence que les mécanismes qui contrôlent l'évolution naturelle, ou ligne de base, des gaz sont les fluctuations de la pression atmosphérique et les mouvements d'eau. Ces mouvements d'eau sont également à l'origine des anomalies de concentration en gaz observées dans le tunnel.

Deux expériences de traçage ont été réalisées à l'échelle de 55 m entre la chambre isolée et un forage horizontal situé en surface. Du SF_6 a d'abord été injecté avec une surpression de 167 mbar, puis de l'hélium-3 un an plus tard avec une surpression de seulement 20 mbar. Le suivi des traceurs en surface a été maintenu pendant plus d'un an après leurs injections. Une percée rapide des traceurs (de 10 à 50 h) a été observée en surface, mais avec une dilution forte, d'un facteur 10^4 à 10^6 . Elle est expliquée par l'advection des gaz dans un petit nombre de fractures, sous l'effet des surpressions même modestes qui accompagnent l'injection. Dans les mois qui suivent l'injection, les traceurs migrent plus lentement dans l'ensemble du réseau de fractures, sous l'effet du pompage barométrique.

Ces mécanismes de transport, identifiés et quantifiés, sont à prendre en compte dans une chaîne d'analyse complète prenant en compte les interactions des gaz avec la géosphère afin d'améliorer la détection des explosions nucléaires souterraines par les gaz radioactifs.

Mots-clefs : Gaz, Traité d'interdiction complète des essais nucléaires (Tice), Zone non saturée, Perméabilité, Fractures, Traçages, Xénon, Hélium, CO_2 , SF_6 , Radon, Advection, Infiltration, Pompage barométrique, Simulation numérique.

DETECTION AND MIGRATION OF GASES IN GEOLOGICAL MEDIA: EXPERIMENTS AND NUMERICAL SIMULATIONS AT THE ROSELEND NATURAL LABORATORY

Abstract

Gas migration in rocks results from natural and artificial processes. Understanding gas migration matters for the Comprehensive Nuclear-Test-Ban Treaty (CTBT), to improve the detection of underground nuclear explosions by their radioactive gases. This work concerns many other fields in Earth Sciences, for fundamental as well as applied science. Issues in improving the detection and the understanding of gas migration in geological media are the following. What are the driving forces of gas migration from depth to the surface? How much of the gases produced at depth do arrive at the surface? Does this migration lead to temporal delays and dilution between production and breakthrough at the surface? To answer these questions, this thesis is dedicated to the identification of gas transport mechanisms in fractured rocks, from both field experiments and numerical simulations.

The Roselend Natural Laboratory (French Alps) is a unique facility for studying gas transport in the unsaturated zone at the field scale, representative of natural processes. Parameters and external forcings have been determined. A tunnel and an isolated chamber, at 55 m depth, as well as boreholes at depth and at the surface, allow to monitor gases that are present in the rocks. Pneumatic properties of the rocks, permeability and porosity, were determined at scales ranging from 1 to 55 m, from both pneumatic injection tests and pressure monitoring as well as from computational studies of fluid flow and transport in porous media. Inverse modeling was used to quantify the associated uncertainties. The results underline the strong spatial heterogeneity of fractured media. The natural dynamics of three gases, CO_2 , SF_6 and ^{222}Rn , was monitored continuously for more than one year. The results, interpreted with numerical simulations, determined that the processes controlling the natural dynamics, or baseline, of gases are atmospheric pressure fluctuations and water movements. Such water movements also explain the gas anomalies observed in the tunnel.

Two tracing experiments were also conducted between the isolated chamber at the end of the tunnel, and the surface. SF_6 was injected first with a 167 mbar overpressure, followed by 3He , one year later, with only 20 mbar overpressure. Monitoring of tracer gases at the surface was conducted for more than one year after the injections. Rapid tracers breakthrough (10 to 50 h) was observed at the surface, with a strong dilution of 10^4 up to 10^6 . This is explained by gas advection in a limited number of fractures, in response to the gas overpressure occurring at the injection point, even if it is small. In the months following the injection, tracers migrate more slowly in the whole fracture network, in response to barometric pumping.

These transport mechanisms, identified and quantified, are now to be included in a comprehensive model taking into account the interactions of gases with the geosphere in order to improve the detection of underground nuclear explosions by their radioactive gases.

Keywords : Gas, Comprehensive Nuclear-Test-Ban Treaty (CTBT), Unsaturated zone, Permeability, Fractures, Tracing experiments, Xenon, Helium, CO_2 , SF_6 , Radon, Advection, Infiltration, Barometric pumping, Numerical simulation.

Remerciements

Mes premiers remerciements vont à mon directeur de thèse, Éric Pili, qui m'a proposé il y a quatre ans de me lancer dans cette belle aventure scientifique et humaine. Merci de m'avoir fait confiance et d'avoir œuvré pour que cette thèse se passe dans les meilleures conditions, en donnant beaucoup de temps et d'énergie. Je tiens à remercier mon co-directeur de thèse Pierre Agrinier, pour sa disponibilité, son soutien et ses conseils.

Mes remerciements vont ensuite à Yves Caristan, Charles Carrigan, François Guyot, Édouard Kaminski et Roland Purtschert, les membres du jury, rapporteurs et examinateurs, qui ont accepté de juger ce travail. Je remercie également Florent Barbecot, Laurent Charlet et Jérôme Fortin, les membres de mon comité de thèse, pour avoir joué le jeu lors des trois réunions qui ont ponctué ma thèse. Leurs commentaires et leurs suggestions ont été particulièrement appréciées pour leur richesse et leur pertinence.

Cette thèse m'a offert la chance de travailler avec plusieurs personnes, et ces collaborations ont toutes été fructueuses et enrichissantes. Je remercie tout d'abord Patrick Richon pour avoir partagé sa connaissance sur le radon et pour ses nombreux conseils. Je remercie Jean-Christophe Sabroux pour ses idées toujours pertinentes et l'intérêt porté au Laboratoire Naturel de Roselend. Merci à Jérôme Wassermann avec qui j'ai partagé mes premières missions à Roselend, et qui a mis en place les mesures de perméabilité. Je remercie également Roger Sestier-Carlin, de m'avoir initiée à l'utilisation et à la mesure du SF_6 sur le terrain. Je remercie Pierre Adler ainsi que Tan Vu et Clément Varloteaux, pour leurs apports à la modélisation numérique des phénomènes observés à Roselend. Merci à Claire Gréau, qui a rejoint depuis un an le projet Roselend pour participer à la réalisation du traçage au xénon, qui constitue l'un des aboutissements de cette thèse.

Durant ces trois dernières années, j'ai partagé mon temps entre le Laboratoire Hydrogéochimie et Études de Sites (CEA), le Laboratoire de Géochimie des Isotopes Stables (IPG Paris) et le Laboratoire Naturel de Roselend. J'ai grandement apprécié cette liberté et cette mobilité, ainsi que les moyens et la confiance qui m'ont été donnés. J'ai été pour cette thèse accueillie à la Direction des Applications Militaires du CEA. Le soutien du Département Analyse, Surveillance, Environnement et de la direction de projet ont été très appréciés. Je remercie l'ensemble des membres du Laboratoire Hydrogéochimie et Études de Sites ainsi que du service Radioanalyse Chimie Environnement. Merci à l'ASG et à André Meesters, qui permettent au Laboratoire Naturel de Roselend de fonctionner correctement. Merci également à Patrick Arnoul de prendre le temps de nous aider à mettre en place un réseau informatique à Roselend. Je tiens enfin à remercier très chaleureusement Isabelle Jeannin pour son efficacité et sa patience devant mes nombreuses requêtes bibliographiques. Toutes ces lectures ont permis à mon travail de s'enrichir des connaissances et expériences passées.

Je remercie l'Institut de Physique du Globe de Paris ainsi que les équipes Géochimie des Isotopes Stables et Géochimie & Cosmochimie, de m'avoir accueillie pour cette thèse. Je remercie également l'administration et la direction de l'École Doctorale. Je remercie Carine Chaduteau pour m'avoir appris la mesure des compositions isotopiques par spectrométrie de masse et m'avoir aidée lors de mes mesures. Je remercie également Manuel Moreira d'avoir pris le temps de m'initier à la mesure de l'hélium-3, et d'avoir accompagné nos projets.

Depuis l'hiver 2009, j'ai passé au total une année dans le Beaufortain. Un grand merci à tous ceux avec qui j'ai partagé le quotidien de cette belle région. Je remercie d'abord la Commune de Beaufort, Mme le Maire Annick Cressens, la directrice générale des Services Isabelle Pinto, l'ensemble des services techniques et son directeur Mathias Sallansonnet, pour nous permettre d'utiliser les locaux et terrains du Laboratoire Naturel de Roselend dans les meilleures conditions. Tous mes remerciements à Patrick Carrera, correspondant local du Laboratoire Naturel de Roselend, pour le temps qu'il passe à Roselend, pour sa curiosité et pour les multiples services qu'il nous rend. Je remercie tous les artisans et fournisseurs du Beaufortain, qui ont participé à la construction des différents infrastructures du Laboratoire Naturel de Roselend. Un grand merci à Bertrand et à Sylvain Menotto pour leur disponibilité et pour la qualité de leurs travaux, qui ont pleinement participé à la réussite des expériences. Merci à la Société Beaufortaine d'Électricité et à Marc Perrier pour leur travail et les nombreuses journées passées à Roselend, été comme hiver. Je remercie tous ces gens de m'avoir adoptée sur les chantiers ! Merci à Bruno et Nathalie Viallet, de la Quincaillerie du Beaufortain, pour nous avoir dépanné à de très nombreuses reprises. Je remercie également le Chalet du Méraillet, où nous avons séjourné lors de nombreuses missions, et qui a su s'adapter à nos horaires parfois tardifs. Pour finir, je remercie Pierre Blanchet et EDF, ainsi que Jean-Luc Jodelet et l'ONF.

Cette thèse a vu l'initiation d'une collaboration entre le CEA et le Lawrence Livermore National Laboratory. Je remercie Jay Zucca d'avoir participé à sa mise en place, et de m'avoir permis de venir me former à Livermore. Merci à Charles Carrigan pour l'intérêt qu'il porte à nos travaux ; merci à Yunwei Sun d'avoir pris le temps de m'apprendre les rudiments de la modélisation numérique avec NUFT et PSUADE.

Pour cette thèse, j'ai eu la chance de pouvoir utiliser de nombreux instruments de mesure. Il n'a pas toujours été facile d'exploiter à fond toutes ces capacités. Le soutien des fournisseurs a été très apprécié. Je remercie Mr Laffite, de Swagelok Paris ; Mr Legall et Mme Duteille d'Autochim, mais également Doug Baer et Feng Dong, de Los Gatos Research, l'équipe de Thermo Scientific, Claude Bertrand d'Algade ainsi que la société ERG, pour leur disponibilité et les efforts qu'ils ont dû fournir pour s'adapter à nos applications, toujours un peu originales.

Pour clôturer ces remerciements, je pense à ma famille et à mes proches, qui ont toujours été à mes côtés, à Paris ou en Beaufortain !

Table des matières

Executive Summary	18
1 Introduction générale et contexte de l'étude	27
1.1 Les mécanismes de transport dans les milieux fracturés non saturés . . .	34
1.1.1 Transport en réponse à un gradient de pression : l'advection . . .	35
1.1.2 Transport en réponse à un gradient de concentration : la diffusion	37
1.1.3 Transport dans les milieux à double perméabilité par diffusion des fluctuations de pression : le pompage barométrique	38
1.1.4 Sources et puits	40
1.2 Les expériences d'injection de traceurs gazeux en sites naturels	43
1.2.1 Compréhension de la migration des gaz produits lors d'une explo- sion nucléaire souterraine	43
1.2.2 Compréhension et identification des connexions entre des cavités souterraines ou des failles et la surface	49
1.2.3 Évaluation de la sûreté de stockages géologiques de déchets nu- cléaires	49
1.2.4 Surveillance de l'intégrité de la séquestration géologique du CO_2 .	51
1.2.5 Conclusion	52
1.3 Le Laboratoire Naturel de Roselend	53
1.3.1 Description des installations	56
1.3.2 Contexte géologique, du régional au local	62
1.3.3 Dynamique naturelle	66
1.3.4 Détermination des paramètres d'écoulement des fluides	71
1.3.5 Conclusion	74
2 Détermination des paramètres pneumatiques au Laboratoire Naturel de Roselend	75

2.1	Étude expérimentale et numérique de la perméabilité et de la porosité à différentes échelles	76
2.1.1	<i>Field and numerical determinations of pneumatic flow parameters of unsaturated fractured porous rocks on various scales</i> (article) . .	76
2.2	Inversion des paramètres d'écoulement d'air à partir d'un test d'injection pneumatique dans la chambre	88
2.2.1	Modélisation numérique de l'écoulement et du transport des fluides	88
2.2.2	Simulations numériques des tests d'injection pneumatique dans la chambre C	91
2.2.3	Analyse de sensibilité et quantification des incertitudes	93
2.2.4	Validation du modèle numérique à l'aide d'une solution analytique	99
2.2.5	Analyse des mouvements d'eau dans la roche lors d'un test d'injection pneumatique	100
2.3	Retour sur la détermination de la diffusivité pneumatique à partir des fluctuations de pression dans la chambre	101
2.3.1	Analyse par les méthodes de traitement du signal	102
2.3.2	Inversion des paramètres pneumatiques à l'aide d'un modèle 1D .	104
2.3.3	Estimation des variations temporelles de la diffusivité pneumatique	106
2.4	Comparaison des méthodes de test d'injection pneumatique et de mesure des fluctuations de pression	109
2.5	Synthèse des perméabilités déterminées au Laboratoire Naturel de Roselend	111
2.5.1	Perméabilité à l'échelle métrique	111
2.5.2	Perméabilité à l'échelle décamétrique	112
2.6	Conclusion	113
3	Détection des gaz : comprendre la dynamique naturelle	115
3.1	Protocoles pour l'analyse des gaz en sub-surface	115
3.1.1	Gaz et moyens de mesures utilisés	116
3.1.2	Séparation des phases air et eau	118
3.1.3	Composition de l'air de la chambre et des forages	120
3.1.4	Flux de gaz du sol	121
3.1.5	Flux de gaz produits par la roche	123
3.2	Hétérogénéité spatiale des productions de CO_2 et de ^{222}Rn	124
3.3	Contrôles de la dynamique naturelle des gaz en zone non saturée	125

3.3.1	<i>Controls on gas baseline concentrations and anomalies in the unsaturated zone</i> (article)	126
3.3.2	Modulation de la ligne de base par l'advection	144
3.3.3	Déclenchement des anomalies en gaz par les mouvements d'eau . .	151
3.4	Complexité de la dynamique naturelle des gaz et de son suivi en surface .	156
3.5	Identification des sources de CO_2 par les isotopes stables du carbone . .	156
3.5.1	<i>Using a laser-based CO_2 carbon isotope analyser to investigate gas transfer in geological media</i> (article)	157
3.5.2	Utilisation de la spectroscopie d'absorption laser (IRIS) pour la mesure de la composition isotopique du CO_2 au Laboratoire Naturel de Roselend	168
3.6	Conclusion	173
4	Migration des gaz : expériences de traçage au Laboratoire Naturel de Roselend	177
4.1	Traçages à l'échelle métrique entre forages du tunnel	177
4.1.1	Protocole expérimental	179
4.1.2	Résultats et discussion	180
4.1.3	Conclusion	183
4.2	Traçages à l'échelle de 55 m entre la chambre isolée et l'atmosphère . . .	184
4.2.1	Protocoles expérimentaux	185
4.2.2	Évolutions des traceurs sur le court terme	192
4.2.3	Évolutions des traceurs sur le long terme	212
4.2.4	Dimensionnement d'un traçage au xénon stable	216
4.3	Conclusion sur les différents mécanismes de transport	218
5	Conclusion générale et perspectives	221
	Bibliographie	227
	Annexes	245
A	Caractérisation de la zone endommagée autour du tunnel de Roselend . .	245
A.1	<i>Characterization and monitoring of the excavation damaged zone in fractured gneisses of the Roselend tunnel, French Alps</i> (article)	245
B	Solution analytique 1D pour un test d'injection pneumatique	256
B.1	État stationnaire	256

B.2	Évolution transitoire	257
C	Solution analytique 1D pour la diffusion d'une onde de pression sinusoïdale	259
D	Perméabilité équivalente d'un milieu hétérogène constitué de plusieurs couches horizontales	260
E	Moyens analytiques de mesure des différents gaz	261
E.1	Spectrométrie alpha	261
E.2	Spectrométrie de masse	262
E.3	Spectroscopie infrarouge	265
E.4	Spectroscopie photo-acoustique	266
F	Quantification du taux de fuite d'une ligne de mesure	269

Table des figures

0.1	Pneumatic injection test in the chamber	19
0.2	Pressure fluctuations in the atmosphere and in the chamber	20
0.3	Baseline gas concentrations measured in the chamber	21
0.4	SF_6 , CO_2 and ^{222}Rn concentrations in the tunnel along with meteorological and hydrological variables, measured during an anomaly	22
0.5	Carbon isotopic composition of CO_2 versus the inverse of CO_2 concentration measured by IRMS or by IRIS in the tunnel, the chamber, the inner room dans the borehole Perm 4	23
0.6	Main results of tracing experiment TE#1 conducted at the Roselend Natural Laboratory in July, 2011.	24
0.7	Main results of tracing experiment TE#2 conducted at the Roselend Natural Laboratory in October, 2012	25
0.8	Summary of processes driving gas migration in the unsaturated zone. . .	26
1.1	Coupe schématique du Laboratoire Naturel de Roselend	28
1.2	Illustration des différents contextes mettant en jeu la migration des gaz dans les milieux géologiques	30
1.3	Carte des 31 stations de mesures de radionucléides certifiées du réseau mondial IMS	31
1.4	Perméabilités relatives à l'eau et à l'air et pression capillaire en fonction de la saturation en eau de la roche, calculées d'après les modèles de Van Genuchten-Mualem et Brooks-Corey	36
1.5	Modèle simplifié de pompage barométrique	39
1.6	Modèle de pompage barométrique obtenu pour un réseau 3D de fractures dans une matrice poreuse	41
1.7	Relation entre la profondeur et l'énergie d'essais nucléaires souterrains ayant conduit à des sorties de gaz radioactifs dans l'atmosphère	46
1.8	Localisation du Laboratoire Naturel de Roselend et de la crête de Surfrêches en Savoie (Alpes françaises), sur la commune de Beaufort-sur-Doron (carte IGN au 100 000 ^{ème})	53

1.9	Vue aérienne du Laboratoire Naturel de Roselend	54
1.10	Coupe verticale à travers le Laboratoire Naturel de Roselend selon l'axe du tunnel	55
1.11	Schéma du tunnel avec la position des rideaux de séparation, du mur étanche, de la inner room et de l'alcôve	56
1.12	Photos du mur étanche délimitant la chambre isolée C, 20 m avant le fond du tunnel	58
1.13	Localisation des installations dans la carrière du Laboratoire Naturel de Roselend	60
1.14	Coupe schématique verticale des moyens d'observation des gaz dans les 10 premiers mètres de la zone non saturée	61
1.15	Photographies des carottes de roche du forage vertical SC5, dans la carrière	62
1.16	Diagramme des directions de fracture dans le tunnel	64
1.17	Schéma de la fracturation du massif sus-jacent au tunnel, extrapolé à partir des traces de fractures relevées dans le tunnel	65
1.18	Variations du niveau d'eau dans le lac de Roselend, inclinaison du massif du Mérailliet, activité en radon dans le tunnel et potentiel électrique du sol mesuré sur la crête du Sur-Frêtes, lors d'une anomalie en radon . . .	66
1.19	Niveau d'eau dans le lac de Roselend et activité en radon mesurée dans le tunnel entre 2002 et 2005	67
1.20	Courbes de percée de Cl mesurées dans les eaux de percolation du tunnel après le déversement d'une solution de NaCl dans la carrière	72
2.1	Coupe verticale du maillage 3D utilisé pour les simulations avec NUFT .	89
2.2	Représentation du modèle de double perméabilité	90
2.3	Pression et débit d'injection mesurés dans la chambre C lors du test d'injection pneumatique du 21/09/2011	91
2.4	Représentation des 1 000 simulations numériques de tests d'injection pneumatique réalisées avec NUFT	94
2.5	Pression à l'état stationnaire dans la chambre obtenue pour les simula- tions d'injection d'air avec NUFT, en fonction de la valeur de la perméa- bilité utilisée dans le modèle	95
2.6	Évolution de la fonction objectif f_1 en fonction de la perméabilité	97
2.7	Densité de probabilité <i>a posteriori</i> pour la perméabilité, obtenue à partir de la fonction objectif f_1	98
2.8	Profils verticaux de saturation au niveau de la chambre C avant injection et après 1 an d'injection d'air à 24 L/min dans la chambre	101
2.9	Fluctuations de pression mesurées dans la chambre C et dans le tunnel .	102

2.10	Spectres de Fourier obtenus à partir des séries temporelles de pression mesurées dans la chambre C et dans le tunnel	103
2.11	Pression mesurée dans le forage Perm 1 et dans le tunnel, et pression calculée dans le forage Perm 1 à partir d'un modèle 1D	106
2.12	Perméabilité à l'air calculée à partir du déphasage et de l'atténuation de la pression dans la chambre par rapport à la pression atmosphérique . . .	107
2.13	Modèles numériques utilisés pour tester la sensibilité des deux méthodes de détermination de la perméabilité à l'hétérogénéité spatiale	110
2.14	Perméabilité apparente k_{model} obtenue à partir de modélisations de tests d'injection pneumatique et de mesures des fluctuations de pression dans la chambre, en fonction de la perméabilité du milieu homogène équivalent k_{eq}	111
2.15	Schéma de synthèse des valeurs de perméabilité des roches du Laboratoire Naturel de Roselend obtenues dans ce travail	114
3.1	Dispositif de séparation des phases eau et air et de séchage de l'air avant analyse	119
3.2	Courbe d'accumulation du CO_2 mesurée sous une cloche au sol de la carrière	122
3.3	Chambres d'accumulations utilisées pour la mesure des flux de gaz du sol dans la carrière	123
3.4	Concentrations en SF_6 et en CO_2 mesurées dans le tunnel, et calculées avec un modèle 1D d'advection	145
3.5	Relations entre l'amplitude des pics de SF_6 dans le tunnel et celle des dépressions simultanées	146
3.6	Représentation schématique du modèle 1D utilisé pour calculer l'évolution de la concentration en SF_6 et en CO_2 dans le tunnel	147
3.7	Concentration en SF_6 dans la porosité de la roche calculée par un modèle 1D	149
3.8	Évolutions de la pression et de l'activité en radon, dans le tunnel, la chambre C et dans le forage Perm 3 de janvier à juin 2013	151
3.9	Évolutions des concentrations en gaz dans le tunnel et des variables contrôlant les flux d'eau (hauteur de nappe, hauteur de neige, débits d'eau) de janvier à juin 2013	152
3.10	Évolution de la température mesurée dans le tunnel à quatre hauteurs, de janvier à juin 2013	153
3.11	Évolutions de l'activité en radon mesurée dans le tunnel et de l'infiltration calculée en surface à partir des données météorologiques	154
3.12	Concentration en CO_2 et composition isotopique $\delta^{13}C_{CO_2}$ mesurées par l'analyseur CCIA-EP dans l'air du tunnel et de la inner room	169

3.13	Composition isotopique du carbone du CO_2 en fonction de l'inverse de la concentration en CO_2 (Keeling plot), mesurées dans le tunnel, la chambre isolée et dans les forages de la paroi du tunnel	171
3.14	Schéma récapitulatif des processus qui contrôlent la dynamique naturelle des gaz en zone non saturée	173
4.1	Les 7 forages sub-horizontaux Perm 4 à 10 dans la paroi Nord de la chambre utilisés pour les injections de traceurs salins	178
4.2	Schéma du dispositif d'injection des traceurs aqueux dans les forages Perm 6, Perm 7 et Perm 8	179
4.3	Conductivité spécifique mesurée dans les forages Perm 9, Perm 10 et Perm 5 lors de l'expérience de traçage salin	181
4.4	Concentrations en K^+ , Li^+ et Cl^- , ions injectés, et en Mg^{2+} , ion non injecté, mesurées dans les forages Perm 9, Perm 10 et Perm 5, et dans l'eau de percolation en FZ2	182
4.5	Montage expérimental pour l'injection d'hélium-3 dans la chambre isolée C lors du traçage n°2	187
4.6	Montage expérimental pour l'injection de SF_6 et R134a dans la chambre isolée C lors du traçage n°2	190
4.7	Schéma de l'équipement et de l'instrumentation utilisés pour le suivi du forage sub-horizontale SCH1	191
4.8	Évolutions des concentrations en 3He et en SF_6 calculées numériquement avec le code NUFT suite au traçage n°2	209
4.9	Champs de concentration en 3He et en SF_6 calculés numériquement avec le code NUFT 11 jours après le traçage n°2 dans la chambre C	210
4.10	Zone de fracture observée dans le forage SCH1 à 28 m de l'extrémité supérieure	211
4.11	Évolution de la concentration en SF_6 et de la hauteur d'eau dans le forage SCH1, et conditions météorologiques dans la carrière (pression, précipitations, hauteur de neige) dans les mois qui suivent le traçage n°1	213
4.12	Évolutions des concentrations en SF_6 , R134a, 3He , 4He , CO_2 et ^{222}Rn dans le forage SCH1, et conditions météorologiques dans la carrière (pression, précipitations, hauteur de neige) dans les mois qui suivent le traçage n°2	214
4.13	Schéma des dispositifs d'injection et de suivi du xénon prévus pour le traçage n°3 entre la chambre et la surface	216
4.14	Schéma récapitulatif des moteurs et mécanismes de migration lors des traçages, à court et long termes	219
B.1	Schéma du modèle 1D radial utilisé pour l'état stationnaire du test d'injection pneumatique dans la chambre C	257

B.2	Schéma du modèle 1D vertical utilisé pour la période transitoire de décroissance de pression d'un test d'injection pneumatique dans la chambre C	258
C.1	Pression calculée dans un modèle 1D vertical à 50 m de profondeur dans une roche poreuse en réponse à la diffusion d'une onde de pression sinusoïdale en surface	259
D.1	Milieu hétérogène constitué de 2 couches de perméabilités différentes et milieu homogène équivalent	261
E.1	Spectres d'absorption dans l'infrarouge moyen et lointain des molécules mesurées dans l'air au Laboratoire Naturel de Roselend : CO_2 , SF_6 , R134a, CH_4 , N_2O , NH_3	268
F.1	Concentration en CO_2 mesurée par l'analyseur CCIA-EP (Los Gatos Research) dans une boucle fermée après une purge avec de l'air sans CO_2 .	270

Liste des tableaux

1.1	Symboles, unités et valeurs des paramètres thermodynamiques qui interviennent dans les équations d'advection et de diffusion.	34
1.2	Caractéristiques d'expériences d'injection de traceurs gazeux en site naturel.	48
1.3	Caractéristiques des forages horizontaux Perm réalisés dans les parois du tunnel	59
1.4	Caractéristiques des forages verticaux SC réalisés dans la carrière	59
1.5	Bilan hydrique réalisé au Laboratoire Naturel de Roselend	68
1.6	Compositions isotopiques du carbone inorganique dissous (DIC) dans l'eau de percolation et du carbone de la calcite des stalactites, et proportions respectives des altérations sulfurique et carbonique de la calcite dans les gneiss du Laboratoire Naturel de Roselend	70
2.1	Gamme de variation des paramètres et coefficients de sensibilité totale calculés pour chacune des variables de sortie.	92
2.2	Synthèse des valeurs de perméabilité et de porosité estimées à l'échelle métrique au Laboratoire Naturel de Roselend.	112
2.3	Synthèse des valeurs de perméabilité et de porosité estimées à l'échelle décimétrique au Laboratoire Naturel de Roselend.	112
3.1	Propriétés des gaz étudiés.	116
3.2	Synthèse des flux Φ de CO_2 et de ^{222}Rn produits par les roches et des concentrations à l'équilibre $[CO_2]^\infty$ et Rn^∞ obtenus au Laboratoire Naturel de Roselend dans cette étude.	125
3.3	Symboles, unités et valeurs des paramètres et variables utilisés pour le modèle 1D d'advection de gaz entre la roche et le tunnel.	148
4.1	Synthèse des conditions expérimentales et des résultats lors des deux expériences de traçage au gaz entre la chambre C et la surface.	185
E.1	Limites de détection, concentrations maximales mesurables et ligne de base mesurées avec les analyseurs photo-acoustiques Innova 1412	266

Executive Summary

Gas migration in fractured rocks results from natural and artificial processes. Understanding gas migration is important for the Comprehensive Nuclear-Test-Ban Treaty (CTBT), to improve the detection of underground nuclear explosions by their radioactive noble gases. Understanding gas dynamics in the unsaturated zone matters also for other fields in Earth Sciences. There are many industrial applications, such as monitoring the integrity of underground disposals of wastes or CO_2 , remediation of volatile contaminants in soils or aquifers, or underground storage of energy in the form of compressed gas. The gas transfer function in the unsaturated zone is also of concern for reliably using speleothems as proxies for the reconstruction of past climate, or to quantify present-day changes in greenhouse gas fluxes. Gas migration finally matters for natural hazards mitigation because it may play a role in the quest of possible precursors. Last but not least, radon gas seepage and ventilation in buildings or working places is of health concern.

The issues in improving the detection and the understanding of gas migration in geological media are the following. What are the driving forces of gas migration from depth toward the surface? How do the geological media control gas migration? How much of the gases produced at depth do arrive at the surface? What are the temporal delays between production and breakthrough at the surface? To answer these questions, this 3-year thesis work is dedicated to the identification of gas transport mechanisms in fractured rocks, from both field experiments and numerical simulations. The long-term goal is to build a full model that takes into account the various processes, delays and dilutions, to improve gas detection at the surface.

The Roselend Natural Laboratory (French Alps) is a unique facility for studying gas transport in the unsaturated zone at the field scale. This underground laboratory has been studied from more than 15 years. Long-term monitoring of external forcings have been conducted, and rock parameters have been determined. Monitoring of gases in the unsaturated zone is made possible thanks to a dead-end tunnel and an isolated chamber at 55 m depth, as well as many boreholes at depth and at the surface. The chamber, whose length and volume are 20 m and 60 m³ respectively, is sealed by a concrete bulkhead designed to be air-tight, and was designed to conduct controlled gas injections at depth.

The core of the present thesis consists in understanding gas migration and improving gas detection in unsaturated fractured rocks, based on monitoring of gases and gas tracing experiments at the Roselend Natural Laboratory. First, two pneumatic parameters of the rocks, permeability and porosity, were determined at various scales. Experimental data were acquired and interpreted by numerical simulations to obtain the values of the parameters, with a focus on uncertainty quantification. Then, long-term monitoring of several gases as well as pressure and water fluxes was conducted. It allows to understand the natural dynamics of gases in response to meteorological forcings, and helps improving the detection of an anomaly in gas concentration compared to the baseline evolution. Finally, two gas tracing experiments were conducted between the isolated chamber and the sub-surface, at 50 m scale, with different tracer gases and injection overpressures. Numerical models are used to interpret tracer breakthroughs in the sub-surface, and show that the main transport mechanism is advection in response to overpressures.

Determination of pneumatic parameters

Air permeability was measured by different methods and at various scales in the fractured crystalline rocks of the Roselend Natural Laboratory. Single-hole pneumatic injection tests as well as differential barometric pressure monitoring were conducted on scales ranging from 1 to 50 m, in both shallow and deep boreholes, as well as in the isolated chamber. The field experiments were first interpreted using numerical simulations in equivalent homogeneous porous media with their real 3D geometry in order to estimate pneumatic parameters (Figures 0.1 and 0.2). These simulations were done by M.T. Vu during his PhD thesis. The NUFT code was then used to perform further 2-phase flow simulations. Global sensitivity analysis and uncertainty quantification were done for the pneumatic injection model, using the PSUADE software.

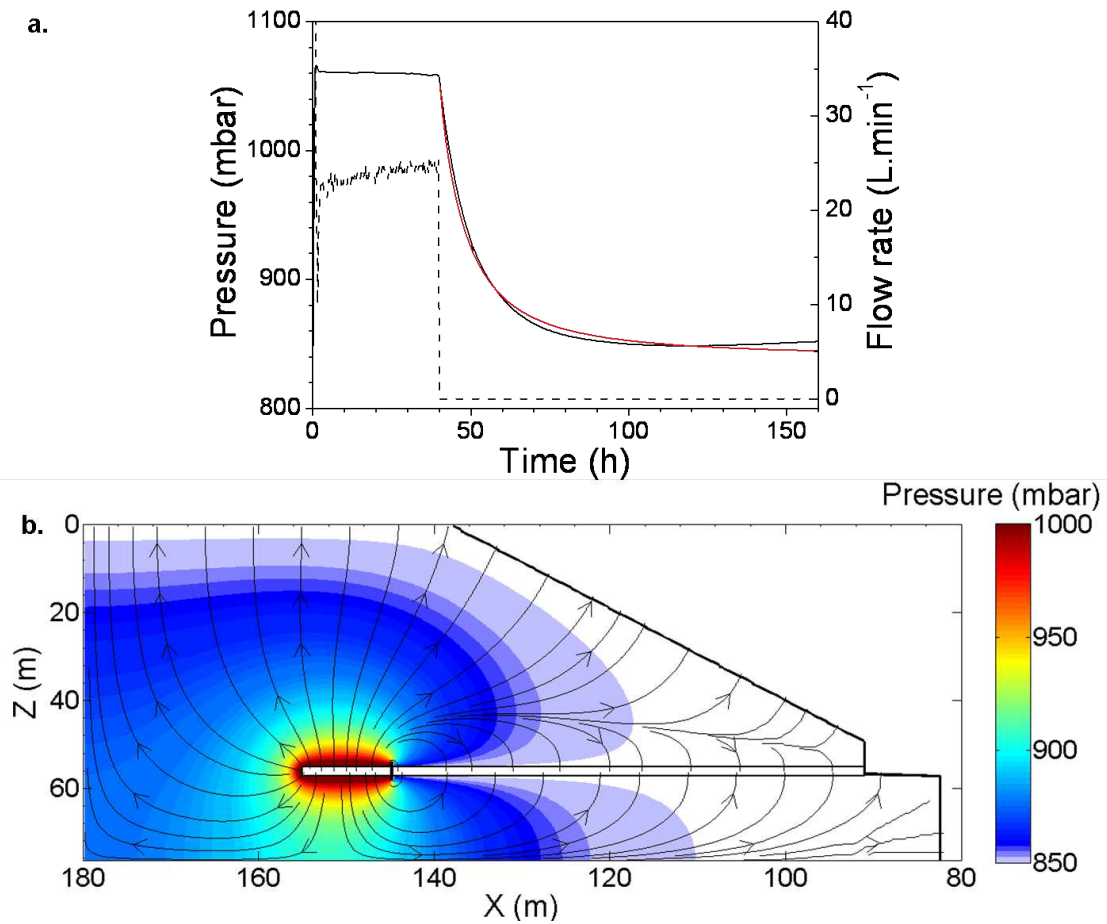


FIGURE 0.1 – a) Pressure variations (black solid line) and air injection flow rate (dotted line) measured during and after air injection into the chamber isolated at the end of the Roselend tunnel. Steady state allows estimating the air permeability. Pressure decrease after the end of the injection is reproduced by numerical simulation (red), using the steady-state permeability, and allows estimating the air-filled porosity. b) 2-D vertical cross section of 3-D air pressure field and streamlines at steady state during a 200 mbar pneumatic injection test in the chamber. From Guillon *et al.* (2013).

For pneumatic injection tests, steady-state data first allow to estimate air permeability. Then, pressure recovery after air injection allows to estimate the air diffusivity, i.e.

the ratio of permeability and porosity, and hence the air-filled porosity (Figure 0.1a). During a pneumatic injection in the chamber, the overpressure attenuates within 15 m, and almost vanishes before reaching the surface (Figure 0.1b).

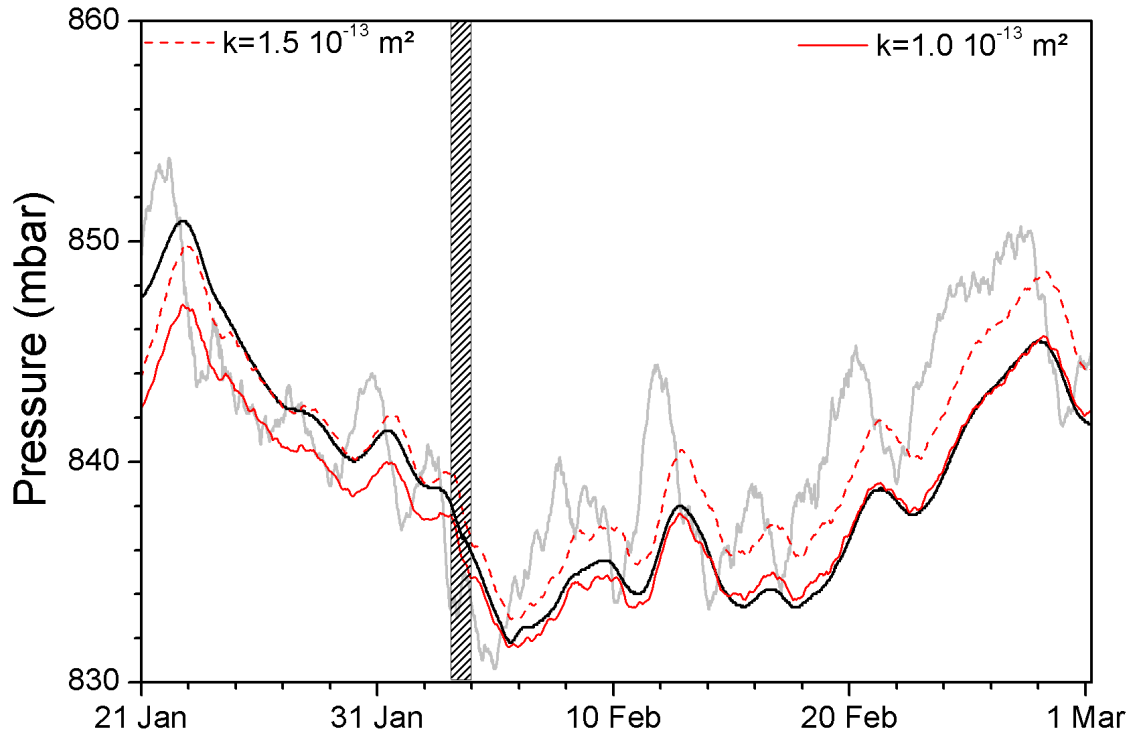


FIGURE 0.2 – Pressure fluctuations measured from January to March 2012, in the chamber (black line) and in the atmosphere (grey line) ; numerical simulation of pressure in the chamber (red solid and dotted lines) for two values of the permeability k .

Atmospheric pressure fluctuations propagate from the surface into the porous rocks, in a diffusive mechanism. Pressure fluctuations measured in the chamber are therefore attenuated and delayed compared to the atmosphere (Figure 0.2). 3D numerical simulations are conducted to reproduce these fluctuations (Figure 0.2) and obtain the value of the air diffusivity. A 1D model was shown to give accurate parameter estimations, while being more simple to use.

The obtained value for the permeability of the fracture network vary between 10^{-14} m^2 at 55 m depth, and 10^{-13} m^2 in the sub-surface. The permeability of the rock matrix is obtained in boreholes devoid of any fracture trace and is very low, on the order of 10^{-19} m^2 . The obtained values for air-filled porosity are in the range 0.2 to 5 %.

The large range in permeability and porosity obtained, depending on the tested boreholes, underline the strong spatial heterogeneity of the fractured medium. Comparison between the various studied cases clarifies the influence of the boundary conditions on the accuracy of an often used 1-D estimate of air permeability. No clear dependence of air permeability on saturation has been found so far, and two-phase flow simulations show only limited water movements even during air injection at 200 mbar overpressure.

In the chamber, a one order-of magnitude difference is found between the air per-

meabilities obtained from pneumatic injection tests and from differential barometric pressure monitoring. This discrepancy is due to a) the approximation of the heterogeneous fractured rock by a homogeneous numerical model, and b) the difference between the rock volumes investigated by pneumatic injection tests and by differential barometric pressure monitoring.

Detection. Natural dynamics of gases

The natural dynamics of three gases (CO_2 , SF_6 and ^{222}Rn) was monitored continuously in the tunnel as well as in the chamber for more than one year. These three gases have different sources and sinks that control their distributions in the unsaturated zone. Figure 0.3 shows that baseline concentrations of the three gases measured in the chamber are explained by the combination of their sources, sinks and advection driven by atmospheric pressure fluctuations.

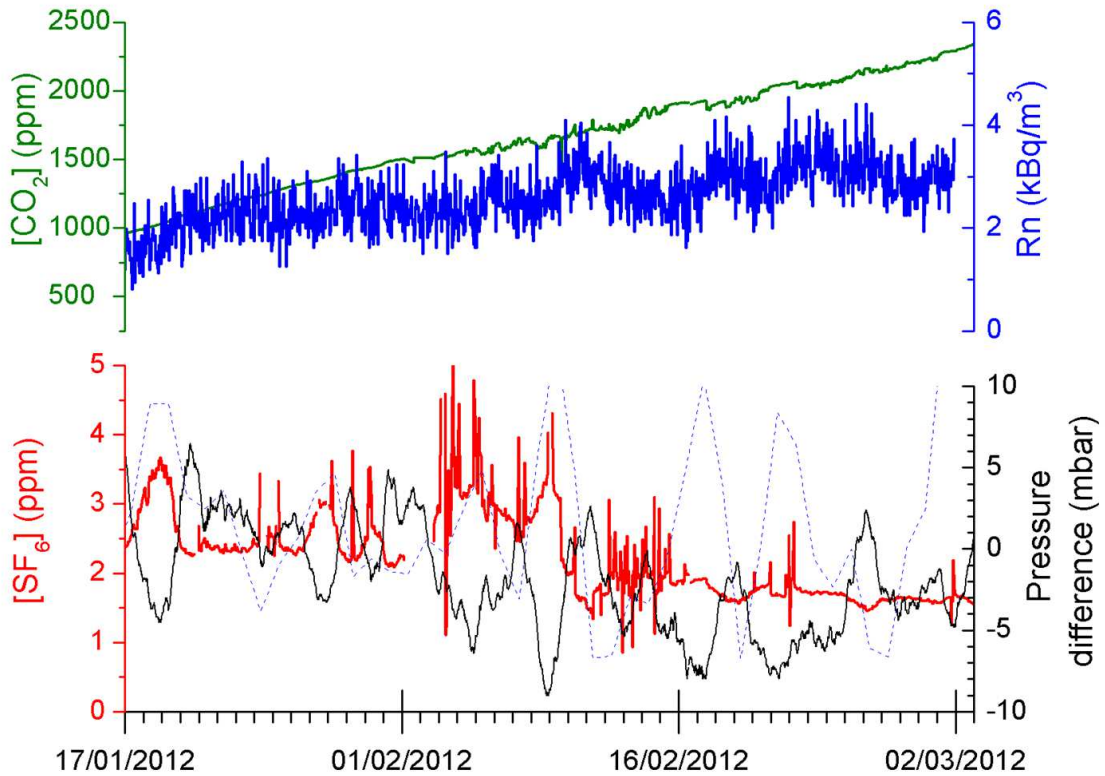


FIGURE 0.3 – Baseline gas concentrations measured in the chamber. a) CO_2 concentration (green) and ^{222}Rn activity (blue). b) SF_6 concentration (red) and first derivative of ^{222}Rn activity (dotted blue, arbitrary units), anti-correlated with the pressure difference between the chamber and the tunnel (black). ^{222}Rn activity was smoothed by averaging data over periods of 24 hours before calculating the first derivative. From Guillon *et al.* (submitted).

With a constant source (radium-226 decay) and a sink (radioactive decay), ^{222}Rn concentration rapidly reaches a plateau. With a constant production from the rock (plant root respiration and calcite dissolution) without any sink, the baseline concentration of CO_2 is increasing linearly. With no natural source and no sink, SF_6 results from an

artificial injection, and its concentration is at first order constant. SF_6 baseline concentration is clearly modulated by advection driven by atmospheric pressure fluctuations. This modulation is masked for CO_2 and ^{222}Rn by the source term production in the rock matrix. Baseline concentrations are thus highly dynamic, which renders difficult any type of monitoring and particularly detection of gas seepage at the surface.

In addition to this highly dynamic baseline, gas concentrations may also show anomalies. This is known to be the case at the Roselend Natural Laboratory, where several transient radon anomalies have been measured every year in the tunnel for more than 15 years. Monitoring of SF_6 , CO_2 and ^{222}Rn , pressure and water fluxes in the chamber and in the tunnel is interpreted thanks to numerical simulation (Figure 0.4b) to show that these transient anomalies cannot result neither from an increase in the gas source nor from an increase in permeability. Gas anomalies are caused by a rapid increase in the pore pressure (Figure 0.4b) following both water infiltration events and rapid rises of the water table (Figure 0.4c).

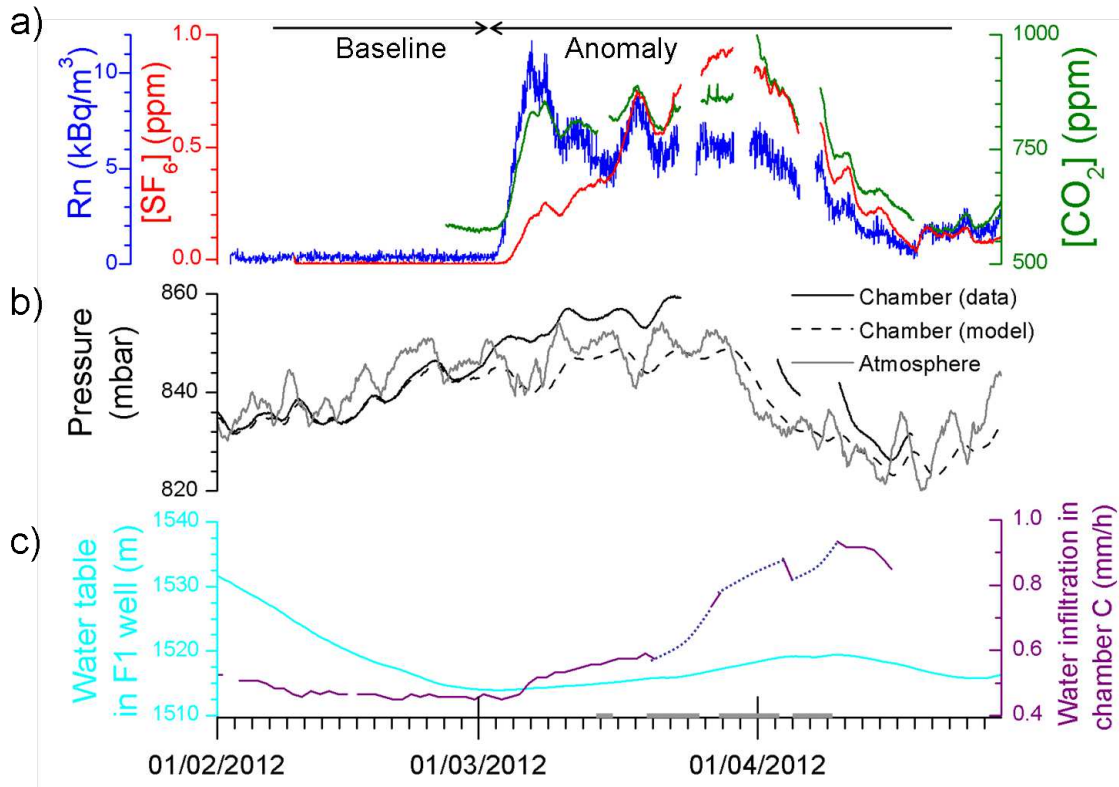


FIGURE 0.4 – a) SF_6 (red) and CO_2 (green) concentrations and ^{222}Rn activity (blue) measured in the tunnel. The transient gas anomaly occurs from 02/03/2012 to 18/04/2012. b) Pressure measured in the chamber (solid black line) and in the tunnel (solid grey line). The dashed line is the modeled pressure in the chamber using the 1D equation of pressure diffusion in an equivalent porous medium. c) Water table measured in a well nearby the tunnel (light blue) and flow rate of water dripping at the roof of the chamber (purple). Grey bars on the time axis indicate periods when data were artificially altered and therefore removed from the graph. From Guillon *et al.* (submitted).

In the sub-surface the natural dynamics of gases is not so well understood. Monitoring of gases in shallow boreholes as well as soil gas accumulation chambers revealed a strong

heterogeneity of the fractured media. Water fluxes play a crucial role in the natural dynamics of gases in the sub-surface. A sub-horizontal borehole was designed to have the largest number of fracture intersections, and to lay parallel above the tunnel. This set-up proved to be efficient for monitoring gas dynamics in the sub-surface but also for monitoring tracer breakthrough during gas migration experiments.

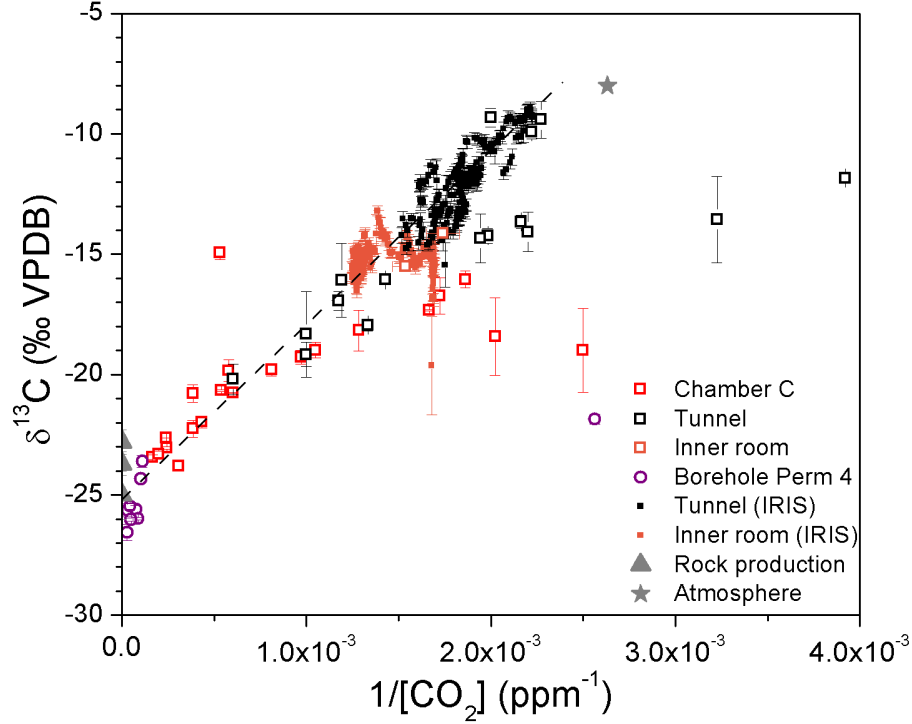


FIGURE 0.5 – Carbon isotopic composition of CO_2 versus the inverse of CO_2 concentration, measured in discrete samples by mass spectrometry in the laboratory (empty symbols) and by laser spectroscopy in the field (full symbols). Black symbols corresponds to the tunnel, red to the chamber, orange to the inner room, and violet to the borehole Perm 4 in the chamber wall. Data are aligned on a mixing line between atmospheric CO_2 (grey star, $\delta^{13}C = -8$ ‰, 400 ppm) and CO_2 produced by the rock, whose isotope composition is given by the intercept at $\delta^{13}C = -25$ ‰ (grey triangles).

A focus is made on CO_2 carbon isotope composition at depth, which allows to identify the various gas sources. Isotope Ratio Infrared Spectroscopy (IRIS) is a new method, that gives access to continuous monitoring of CO_2 isotope composition in the field. A thorough assessment of a CO_2 carbon isotope analyzer was performed, to determine the stability, accuracy, and non-linearity. The CO_2 carbon isotope analyzer was then used to monitor CO_2 in the tunnel atmosphere and in the inner room, another isolated cavity of the tunnel similar to the chamber. Discrete samples were also taken in the chamber and the tunnel and analyzed at Institut de Physique du Globe de Paris by isotope ratio mass spectrometry, which remains the reference method. The results are plotted in a Keeling plot (Figure 0.5) to identify the CO_2 sources. The two methods give similar results. CO_2 isotope compositions in the tunnel and in the chamber result from a binary mixing between atmospheric CO_2 , with a $\delta^{13}C_{CO_2}$ of -8 ‰ VPDB, and CO_2 degassed from dripping water, with a $\delta^{13}C_{CO_2}$ between -22 and -25 ‰ VPDB (Figure 0.5).

Migration. Tracing experiments

Two tracing experiments were conducted between the isolated chamber at the end of the tunnel, and the sub-horizontal observation borehole in the sub-surface. In July 2011, tracing experiment TE#1 consisted in the injection of SF_6 at 167 mbar overpressure in the isolated chamber. Experimental and analytical methods for tracer injection and breakthrough monitoring were developed and validated for this experiment, which was a demonstration of feasibility of such tracing experiment through 55 m meters of unsaturated fractured rocks. Tracing experiment TE#2, in October 2012, aimed at validating the use of a noble gas tracer and a rare isotope. It consisted in the injection of 3He , associated with SF_6 and a freon (R134a) at 20 mbar overpressure in the chamber. Figures 0.6 and 0.7 present the results of these tracing experiments TE#1 and TE#2. Monitoring of tracer gases at the surface was conducted for more than one year after the injections.

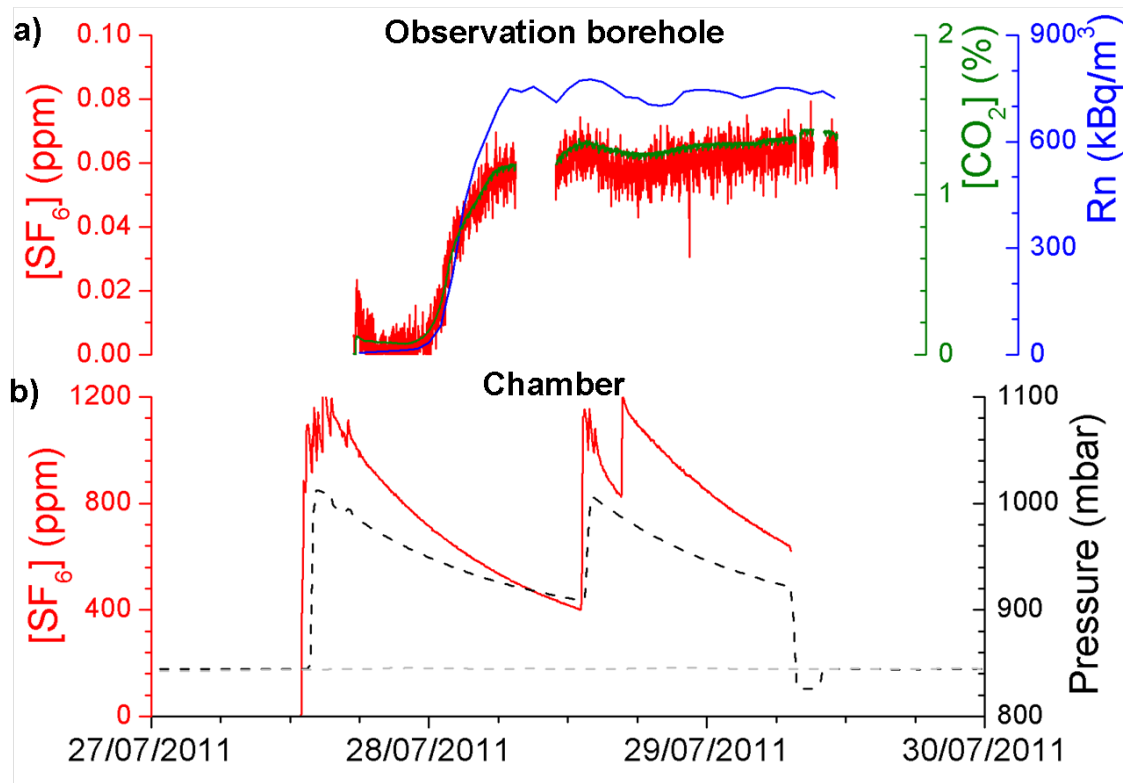


FIGURE 0.6 – Main results of tracing experiment TE#1 conducted at the Roselend Natural Laboratory in July, 2011. a) SF_6 breakthrough in the observation borehole 10 hours after the injection (red). CO_2 (green) and ^{222}Rn (blue) concentrations increased simultaneously with SF_6 breakthrough. b) Source term in the chamber. Dashed lines represent pressure in the chamber (black) and in the atmosphere (grey). SF_6 injected concentration is represented by the red line. From Guillon *et al.* (in prep.).

Following injection of the tracer gases in the chamber, they are advected in the porous rock due to the injection overpressure, even if it is only of 20 mbar. Rapid and large tracer breakthrough was thus observed in the tunnel and well reproduced by 1D numerical simulation (Figure 0.7c). At the surface, rapid tracer breakthrough was observed after 10 to 50 h, with a strong dilution of a factor of 10^4 to 10^6 (Figures 0.6a and

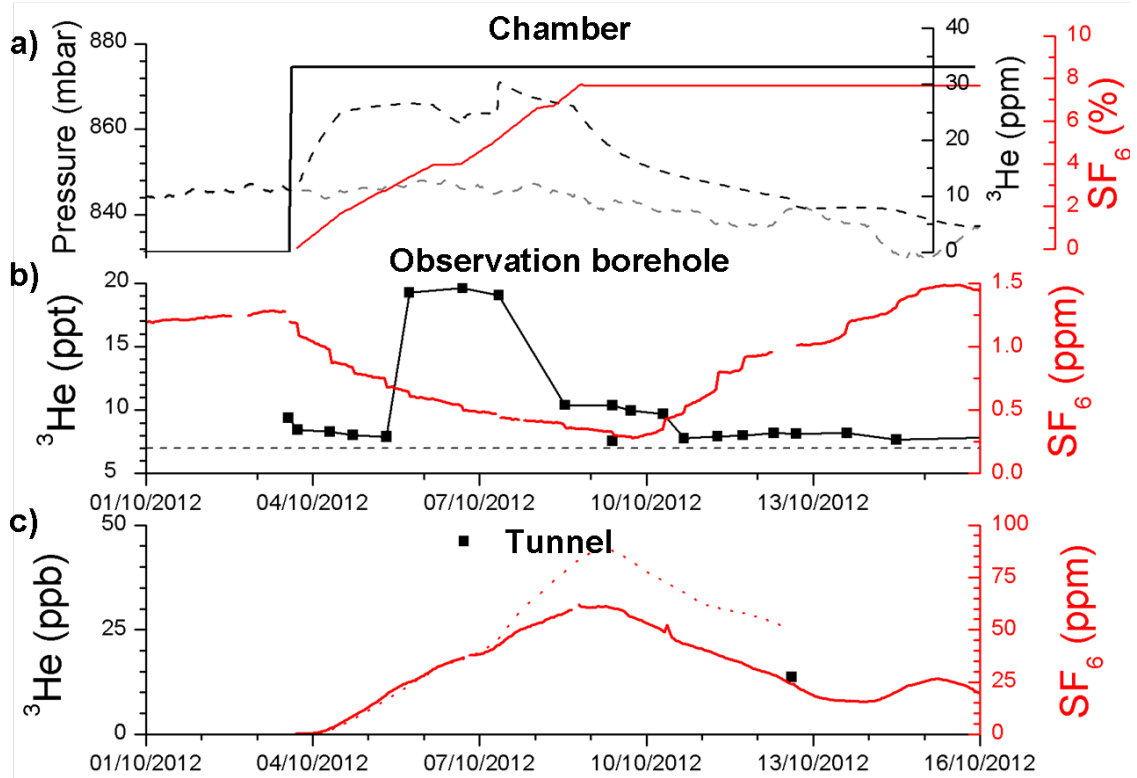


FIGURE 0.7 – Main results of tracing experiment TE#2 conducted at the Roselend Natural Laboratory in October, 2012. a) Source term in the chamber. Dashed lines represent pressure in the chamber (black) and in the atmosphere (grey). ^3He injected concentration is represented by the black line, SF_6 concentration by the red line. b) ^3He breakthrough in the observation borehole 45 ± 5 hours after the injection (squares and black line). High level background SF_6 concentration (red line) results from tracing experiment TE#1. c) SF_6 (in red) and ^3He (squares) breakthroughs measured in the tunnel following TE#1, and SF_6 concentration calculated by 1D numerical model (dotted red line). Modified from Guillon *et al.* (in prep.).

0.7b). This is explained by gas advection in a limited number of percolating fractures. Tracer breakthrough times are mainly controlled by the injection overpressure. In the months following each injection, there is no longer injection overpressure, and tracers migrate more slowly in the entire fractured porous rock, in response to atmospheric pressure fluctuations. This mechanism, called barometric pumping, appears difficult to study experimentally at the Roselend Natural Laboratory because it involves long time scale and small quantities of gas. Numerical simulation also indicate that this mechanism may not always play a role, depending on the combination of the characteristics of the medium, the tracers properties and the external forcings (P. Adler, pers. com.).

Results from tracing experiment TE#1 and TE#2 helped to prepare tracing experiment TE#3 with stable xenon as a tracer injected at less than 5 to 10 mbar overpressure in the chamber. This last experiment will help deciphering the contribution of fracture network(s) and matrix as well as the role of barometric pumping in gas migration.

Conclusion

This work builds an overview of gas migration in unsaturated fractured rocks, at the 1 to 55 m scale. Important experimental and analytical efforts and developments were done for continuous field monitoring of gases. Numerical modelling was performed for a quantitative interpretation of the measurements. At the Roselend Natural Laboratory, monitoring of gases in sub-surface boreholes or at the surface appears highly complex, because of the heterogeneity of the fractured rocks and of the large water fluxes.

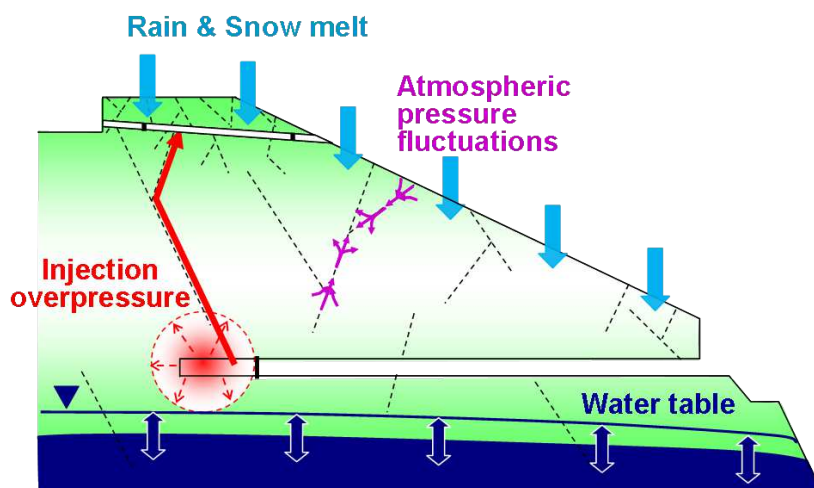


FIGURE 0.8 – Summary of processus driving gas migration in the unsaturated zone. Gas advection, represented by arrows, is driven by overpressures and occurs mainly in the highly heterogeneous fracture network. Atmospheric pressure fluctuations (purple) move gases in and out of the rocks. Water movements (blue) result either from rain and snowmelt infiltration or from water table fluctuations and also drive gas migration. Injection of tracer gases in the chamber leads to rapid migration to the sub-surface in a percolating fracture network.

Detection of gases requires the identification of external forcings (atmospheric pressure fluctuations, water budget) to understand the baseline dynamics. Two regimes are observed at the Roselend Natural Laboratory, baseline and anomalies. This is a general feature that also exists in all unsaturated zones, from depth to surface. Tracer breakthrough is an excursion out of this natural range.

The main transport mechanism for gases in the unsaturated zone appears to be advection. Permeability and porosity are the two rock properties controlling gas advection. They were determined at scales ranging from 1 to 55 m, using both experimental and numerical methods. Modest overpressures, of the order of 1 to 10 mbar, are due to water movements, atmospheric pressure fluctuations, and artificial injections (Figure 0.8) and are driving gas migration. Multi-parameter monitoring of several gases as well as pressure and water fluxes is thus a key feature wherever detection has to be made. Tracing experiments conducted at the 50 m scale at the Roselend Natural Laboratory helped improving the detection of underground nuclear explosions. Gases migrate very rapidly to the surface driven by injection overpressure. However, detection of tracer breakthrough is made difficult by the very large dilution that occurs during migration through percolating fracture networks.

Chapitre 1

Introduction générale et contexte de l'étude

Le 12 février 2013, la Corée du Nord déclarait avoir réalisé un essai nucléaire, le troisième depuis 2006. Cet événement, unanimement condamné, met au défi les politiques internationales de désarmement et de non prolifération. Un événement sismique suspect a en effet été détecté en Corée du Nord, mais une sortie de gaz radioactifs, très faible, n'a pu être détectée qu'un mois et demi après l'explosion et son interprétation reste discutée. La radioactivité est un élément déterminant pour le diagnostic d'une activité nucléaire. Les sorties immédiates de gaz radioactifs suite à un essai nucléaire souterrain ne sont donc pas systématiques, contrairement à l'idée qui avait prévalu lors de l'élaboration du réseau mondial de détection des essais nucléaires clandestins (Carrigan *et al.*, 1996). Peut-on alors prévoir l'occurrence et l'intensité des sorties de gaz radioactifs après une explosion nucléaire souterraine ? Et quels sont les paramètres qui les contrôlent ?

Le projet ROSELEND-Gas

Depuis 2008, un programme de recherche initié au CEA vise à améliorer la détection des essais nucléaires souterrains par la prise en compte des interactions entre les gaz et la géosphère. En particulier, le projet ROSELEND-Gas (Research On Solicitation Effects in a Large-scale Experiment under Natural Dynamics with Gas, Pili *et al.* (2008b)) repose sur la réalisation et l'exploitation d'expériences de traçage gazeux en site naturel à l'échelle de 50 m, pour établir la fonction de transfert des gaz depuis le point de tir jusqu'à l'atmosphère. Ce projet bénéficie des connaissances acquises et des structures développées au Laboratoire Naturel de Roselend (Savoie) depuis plus de 15 ans. Les 4 points-clefs du projet ROSELEND-Gas sont :

Instrumentation : Développement de l'instrumentation et des procédures pour la mise en œuvre et la mesure des gaz dans l'environnement ;

Expérimentation : Détermination expérimentale des processus physiques et chimiques qui contrôlent la migration des gaz dans la géosphère ;

Simulation : Développement et validation de capacités de modélisations numériques de la migration des gaz dans la géosphère ;

Transposition : Développement des capacités à appliquer les développements précé-

dents à toute situation d'intérêt.

Le transport des gaz dans les roches peut s'étudier à partir d'expériences, où une quantité connue de gaz est appliquée en un point et mesurée en fonction du temps en un autre point. Entre l'échelle du laboratoire, limitée dans sa représentativité, et celle du terrain, limitée par les moyens qu'il est possible de mettre en œuvre et une grande complexité, se situent les sites naturels instrumentés. C'est le cadre offert par le Laboratoire Naturel de Roselend (Provost *et al.*, 2004), où l'existence d'un tunnel à environ 50 m sous terre dans un massif de roches cristallines, en bordure d'un lac artificiel dans les Alpes, offre la possibilité d'étudier les transferts depuis le cœur de la zone non saturée vers l'atmosphère (voir Figure 1.1).

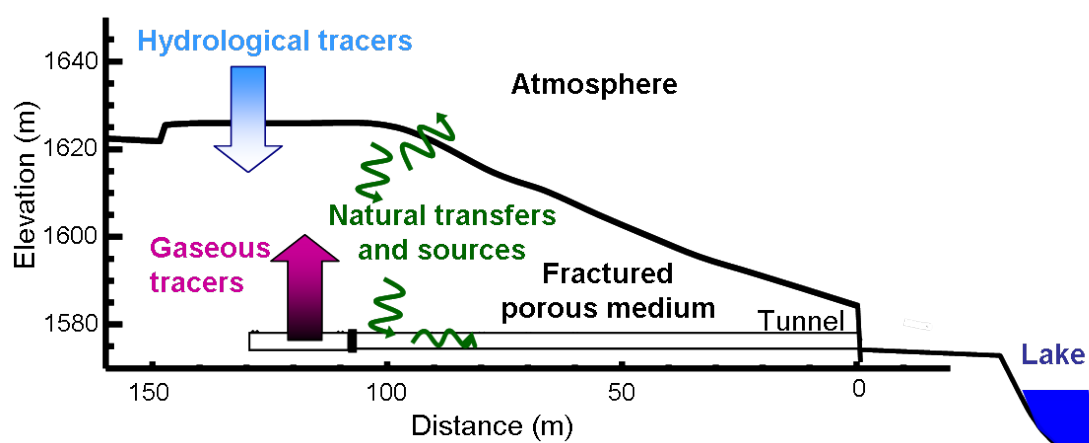


FIGURE 1.1 – Coupe schématique du Laboratoire Naturel de Roselend montrant les différentes études menées pour la compréhension des transferts de fluides dans les milieux poreux fracturés en réponse à des sollicitations naturelles et artificielles. Suivi des processus naturels, ventilation du tunnel, émanation, respiration de la zone endommagée, érosion, bilan carbone (en vert) ; expériences de traçage et de suivi temporel pour la détermination des propriétés hydrogéologiques (en bleu). L'étude de la migration des gaz depuis le tunnel vers l'atmosphère (en violet) fait l'objet de cette étude. D'après É. Pili (com. pers.).

FIGURE 1.1 – Schematic cross-section of the Roselend Natural Laboratory showing the various studies conducted to understand fluids transport in fractured porous media in response to natural or artificial forcings. Monitoring of natural processes, tunnel ventilation, emanation, breathing of the damaged zone, weathering, carbon budget (in green) ; tracing experiments and long-term monitoring to determine hydrogeological properties (in blue). This study deals with gas migration from the tunnel to the atmosphere (in purple). From É. Pili (pers. com.).

Cette thèse a fait l'objet d'un travail expérimental très important, avec l'utilisation et le développement de nombreux instruments de mesures. L'instrumentation du Laboratoire Naturel de Roselend, initiée il y a plus de 15 ans, a été poursuivie, avec le développement de protocoles analytiques pour la mise en œuvre et la mesure des gaz en sub-surface. Des procédures expérimentales ont été établies pour l'injection de gaz traceurs dans une cavité isolée de l'atmosphère et la mesure de la percée des gaz traceurs dans un forage de sub-surface. Enfin, le développement et la validation d'outils pour la simulation numérique de la migration des gaz dans la géosphère ont été initiés.

La migration des gaz en Sciences de la Terre

L'amélioration des connaissances concernant la détection et la migration des gaz dans les milieux géologiques est d'un intérêt très général en Sciences de la Terre. Au delà de la détection des essais nucléaires clandestins, l'étude et la compréhension de la migration des gaz dans les roches fracturées et plus particulièrement en zone non saturée, est ainsi l'objet d'enjeux très importants. La zone non saturée est la portion de roche située au dessus de la nappe phréatique. Elle est définie par la présence d'air dans la porosité et par une saturation en eau inférieure à 1. Si la phase eau fait l'objet de nombreuses études dans la zone non saturée, la phase air est rarement étudiée en elle-même (Evans, 2001). L'étude des mouvements de gaz en zone non saturée doit donc être entreprise, et peut être réalisée avec un formalisme proche de celui de l'hydrogéologie des milieux saturés. Les enjeux concernent d'abord la compréhension du transport diphasique eau-air (Bogdanov *et al.*, 2003; Liu *et al.*, 2002), la représentation des milieux fracturés (Liu *et al.*, 2003) ou encore l'inversion des paramètres de transport (Koudina *et al.*, 1998).

La Figure 1.2 représente les différents contextes dans lesquels la migration des gaz est étudiée, à différentes profondeurs dans la croûte terrestre, et dans différents types de roches. Les mécanismes de production et de transport des gaz en zone non saturée sont étudiés dans le domaine des risques naturels, pour identifier de possibles signaux précurseurs de séismes (Toutain et Baubron, 1999; King, 1986; Ciotoli *et al.*, 2007; Richon *et al.*, 2003), des marqueurs d'activité magmatique et volcanique (Sorey *et al.*, 1998; Mazot *et al.*, 2008; Carapezza *et al.*, 2004) ou d'instabilités gravitaires (Choubey *et al.*, 2005; Ramola *et al.*, 2008). Une attention particulière est portée au radon pour déterminer les mesures de radioprotection nécessaires dans les habitations (Tanner, 1993).

Dans le domaine industriel, le stockage souterrain de gaz existe depuis plusieurs dizaines d'années afin de constituer des réserves temporaires d'énergie (Crotagino et Quast, 1980). Depuis une dizaine d'années, de nombreuses études sont menées autour de la séquestration du CO_2 . Afin de garantir l'intégrité des stockages de CO_2 dans des aquifères profonds ou d'anciens réservoirs de pétrole, on cherche à modéliser la migration du CO_2 de la profondeur vers la surface (Lewicki *et al.*, 2007a), et à développer des méthodes analytiques permettant de détecter d'éventuelles fuites en surface (Humphries *et al.*, 2008). Ces dernières années, les études se tournent vers l'amélioration des taux de récupération des hydrocarbures, dans le cadre des projets d'EOR (Enhanced Oil Recovery) ou de fracturation hydraulique pour l'exploitation des gaz de schistes (Cui *et al.*, 2009). La diversification des ressources en énergie fait également apparaître des besoins semblables pour le stockage d'énergie dans des cavités sous forme d'air comprimé (Kim *et al.*, 2012), ou le stockage souterrain d'hydrogène (Ozarslan, 2012). Le stockage géologique des déchets nucléaires à haute activité et à vie longue, dans des roches argileuses ou cristallines, demande également de comprendre et modéliser la migration des gaz qui se formeraient (Mishra et Zuidema, 1991; Xu *et al.*, 2013; Didier *et al.*, 2012).

Dans le domaine environnemental, le fonctionnement de la zone non saturée est étudié pour des applications variées : la détermination du temps de recharge de la nappe en gaz utilisés comme traceurs de temps (Darling *et al.*, 2012), la remédiation de sites pollués (Auer *et al.*, 1996), l'interprétation des archives climatiques par les spéléothèmes (Lambert et Aharon, 2011; Verheyden *et al.*, 2008) ou les gaz rares dissous (Alvarado *et al.*, 2009) ou encore les flux de gaz créés par l'activité biologique (Norman *et al.*, 1992).

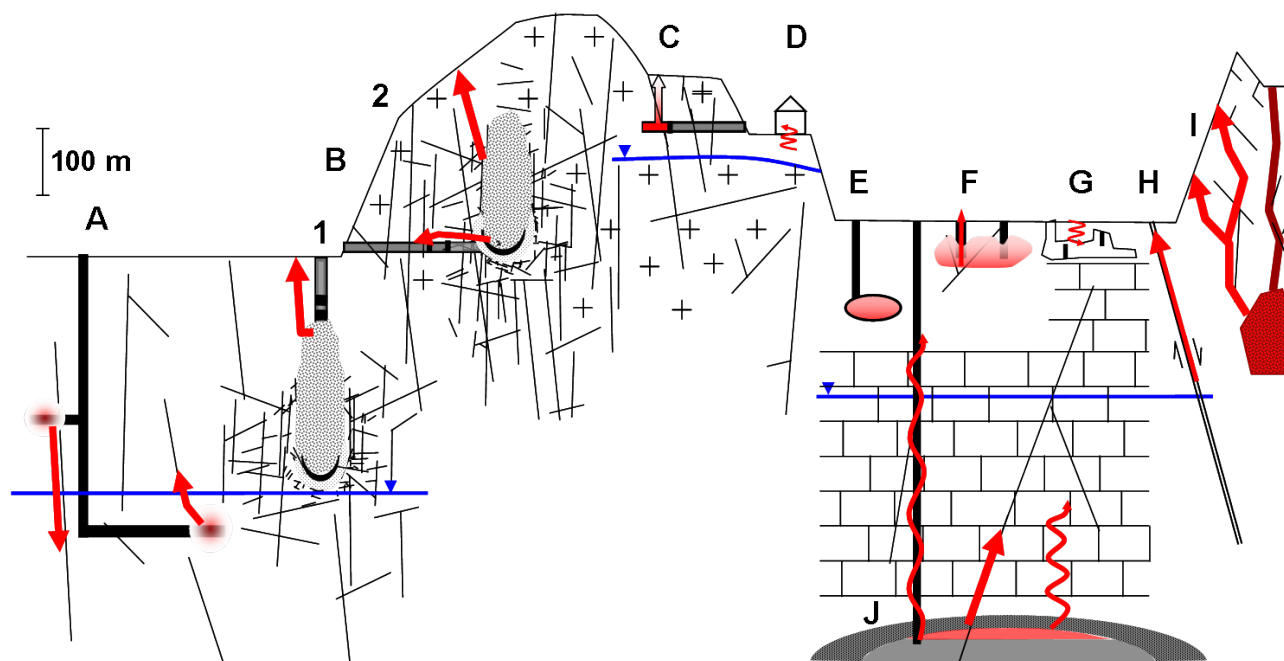


FIGURE 1.2 – Illustration des différents contextes mettant en jeu la migration des gaz dans les milieux géologiques, de la sub-surface jusqu'à quelques milliers de mètres de profondeur dans la croûte terrestre, dans des contextes hydrogéologiques variés. A : stockage géologique des déchets nucléaires ; B : essais nucléaires souterrains en puits (1) et en tunnel (2) ; C : Laboratoire Naturel de Roselend et expériences de migration de traceurs gazeux ; D : migration du radon dans les habitations ; E : stockage d'énergie sous forme d'air comprimé ou d'hydrogène gazeux dans des cavités de sub-surface ; F : remédiation d'une zone contaminée par des polluants volatils ; G : formation de spéléothèmes dans des grottes ; H : signal précurseur du mouvement d'une faille active ; I : dégazages en zone volcanique ou hydrothermale ; J : stockage de CO_2 dans un aquifère profond ou un réservoir de pétrole. La migration des gaz, lorsqu'elle est attendue, est représentée par les flèches rouges. Le trait bleu représente la nappe.

FIGURE 1.2 – Illustration of the settings where gas migration in geological media matters, from the sub-surface down to thousands of meters in the Earth crust, in various hydrogeological contexts. A : underground storage of nuclear wastes ; B : underground nuclear tests in a borehole (1) or a tunnel (2) ; C : Roselend Natural Laboratory with gas tracing experiments ; D : radon migration into houses ; E : compressed air or hydrogen storage in sub-surface cavities ; F : remediation of volatile contaminants ; G : speleothem formation in caves ; H : precursory signal of the movement of an active fault ; I : degassing in volcanic or hydrothermal areas ; J : CO_2 storage in a deep aquifer or petroleum reservoir. Gas migration, when it is awaited, is represented by red arrows. The blue line represents the water table.

De nombreuses études concernent également les évolutions des flux de gaz à effets de serre à cause de modifications de la couverture neigeuse, du bilan hydrique (van Bochove *et al.*, 2000; Ullah et Moore, 2011) ou encore la fonte du permafrost (Walter Anthony *et al.*, 2012).

Pour toutes ces raisons, les études expérimentales sur la migration des gaz en zone

non saturée apportent des données fondamentales. L'utilisation de modèles numériques est nécessaire pour interpréter ces données expérimentales, et pouvoir ensuite simuler la migration des gaz dans d'autres contextes pour lesquels on ne dispose pas de données expérimentales.

Le Traité d'interdiction complète des essais nucléaires et les moyens de détection



FIGURE 1.3 – Carte des 31 stations de mesures de radionucléides certifiées du réseau de mesure mondial IMS. D'après Otice (2013).

FIGURE 1.3 – Map of the 31 radionuclide stations of the International Monitoring System (IMS). From CTBTO (2013).

Le Traité d'interdiction complète des essais nucléaires (Tice) interdit toute explosion nucléaire, et établit un régime de vérification basé sur un réseau de surveillance mondial, appelé International Monitoring System (IMS), et un régime d'inspection sur site (On-Site Inspection, OSI). Le Tice est ouvert à la signature depuis 1996 et a été ratifié par 159 États au 1^{er} janvier 2013 (Otice, 2013). Même si toutes les puissances nucléaires n'ont pas ratifié le traité, la plupart ont arrêté les essais nucléaires dans les années qui suivirent l'ouverture à la signature. En attendant l'entrée en vigueur du traité, l'Organisation du traité d'interdiction complète des essais nucléaires (Otice) met en place et opère le réseau de stations de l'IMS, qui permet de détecter les essais nucléaires, quel

que soit le milieu où ils seraient réalisés. Ce réseau est actuellement composé de 275 stations, qui utilisent une ou plusieurs des quatre technologies complémentaires suivantes : les infrasons, les ondes hydroacoustiques, les ondes sismiques et les radionucléides (aérosols ou gaz). Ces dernières années, ce réseau a prouvé son intérêt à la fois pour la détection des trois essais nucléaires souterrains nord-coréens, mais également pour le suivi d'autres événements naturels ou anthropiques, comme par exemple le fond géochimique en radionucléides dans l'atmosphère lié aux productions des usines de radionucléides à usage médical, des centrales nucléaires et des usines de retraitement du combustible (Saey *et al.*, 2010b) ou les rejets radioactifs suite à l'accident de la centrale nucléaire de Fukushima (Achim *et al.*, 2012).

La détection d'une explosion nucléaire souterraine est réalisée très rapidement et très précisément par les stations sismiques, qui permettent de localiser l'explosion et d'estimer son intensité (Nuttli, 1988; Shumway, 2001). Cependant, une explosion de quelques kilotonnes d'équivalent TNT (kt) peut avoir été réalisée avec des explosifs chimiques et non avec une explosion nucléaire, et les ondes sismiques ne permettent pas de discriminer ces deux origines (Stump *et al.*, 1999). C'est la détection de radioactivité, sous forme d'aérosols ou de gaz radioactifs, qui est le témoin décisif de la nature nucléaire d'une explosion. Alors que les premières stations ont été installées en 2000, l'IMS compte 31 stations de mesure des radionucléides au 1^{er} janvier 2013, qui sont représentées sur la Figure 1.3. La détection de gaz rares radioactifs par les stations de l'IMS est couplée à la modélisation du transport atmosphérique pour calculer les rétro-trajectoires et identifier les sources possibles (Becker *et al.*, 2010). L'analyse des rapports isotopiques $^{135}\text{Xe}/^{133}\text{Xe}$ et $^{133\text{m}}\text{Xe}/^{131\text{m}}\text{Xe}$ permet de discriminer les différentes sources civiles d'une explosion nucléaire (Kalinowski *et al.*, 2010; Kalinowski et Tuma, 2009; Saey *et al.*, 2010a).

Pour prendre en compte le devenir des radionucléides dans sa totalité, depuis leur production suite à l'explosion souterraine jusqu'à leur détection par une station de l'IMS, la dernière étape qui doit encore être considérée est le transport des gaz dans la géosphère, depuis le point de tir jusqu'à la libération en surface. Cette étape de transport peut être à l'origine de délais temporels, de dilutions ou encore d'évolutions des rapports isotopiques des radionucléides, qui modifient les caractéristiques de la détection au niveau des stations de l'IMS. Ces phénomènes, mal connus, demandent à être étudiés en détail, à la fois par des expériences et des simulations numériques. C'est l'objet du projet ROSELEND-Gas, dont ce travail présente la première composante : détection et migration des gaz dans les milieux géologiques. Un modèle numérique complet de la production et de la migration des radionucléides depuis l'explosion vers la surface a été récemment proposé (Lowrey *et al.*, 2012, 2013), mais il est basé sur de nombreuses simplifications, et demande à être validé par rapport à des données expérimentales. L'approche proposée ici est avant tout expérimentale, et procède par étapes successives en étudiant chaque mécanisme de migration individuellement avant d'intégrer les résultats dans un modèle complet.

Organisation du manuscrit

L'objectif de cette thèse est de comprendre comment les gaz migrent dans les milieux fracturés non saturés, et de savoir détecter des gaz traceurs dans ces milieux. Ce manuscrit présente les travaux et les résultats obtenus, qui sont structurés en trois chapitres. Dans chaque chapitre, les résultats principaux sont intégrés sous forme d'articles,

publiés, soumis ou en préparation, auxquels des compléments sont ensuite ajoutés, avec d'autres jeux de données ou d'autres modélisations.

Après ce chapitre introductif, le contexte général de l'étude est présenté. Les différents mécanismes de transport des gaz dans les roches sont d'abord rappelés, avec leurs descriptions mathématiques utilisées dans les modèles numériques. Une synthèse bibliographique sur les différentes expériences de traçages gazeux réalisées en site naturel a permis de définir le cadre des expériences de traçages réalisées dans cette thèse. Pour finir, le Laboratoire Naturel de Roselend est présenté, et les principales connaissances qui y ont été acquises depuis plus de 15 ans sont synthétisées.

La migration des gaz est au premier ordre contrôlée par la perméabilité et la porosité des roches, et ces deux paramètres ont été déterminés à différentes échelles dans les roches du Laboratoire Naturel de Roselend. Ces travaux sont présentés dans le deuxième chapitre. Les résultats expérimentaux sont interprétés à l'aide de simulations numériques pour en déduire ces paramètres d'écoulement, dont la connaissance est fondamentale pour l'interprétation quantitative des expériences de traçage.

La détection d'un gaz traceur étant définie comme une augmentation par rapport à la ligne de base, il faut bien connaître et comprendre la dynamique, sous l'effet des forçages naturels, des gaz présents en sub-surface, qu'ils soient d'origine naturelle (CO_2 , ^{222}Rn) ou introduits lors de traçages (SF_6 , R134a, 3He , Xe). C'est l'objet du troisième chapitre. Au Laboratoire Naturel de Roselend, on observe en effet une importante variabilité de nombreux paramètres de forçage d'ordres mécaniques, météorologiques, hydro-géologiques et biogéochimiques. La variabilité spatiale et temporelle des concentrations des différents gaz mesurés nous renseigne sur la nature des forçages qui les contrôlent. On est ainsi beaucoup mieux armé pour procéder à un suivi et à une détection lors d'une expérience de traçage.

Enfin, même si aucun traçage ne peut reproduire les conditions d'une explosion nucléaire souterraine, la réalisation de traçages gazeux constitue une approche par analogie, pour étudier les processus majeurs de migration des gaz radioactifs après une explosion nucléaire souterraine. Les expériences de traçages gazeux qui ont été réalisées durant cette thèse, à l'échelle métrique puis à l'échelle de 50 m, sont présentées dans le quatrième chapitre. Trois expériences ont été réalisées avec des traceurs et dans des conditions d'injection (i.e. de forçage) différentes. Les résultats obtenus aux échelles de temps courtes (quelques jours) et longues (plusieurs mois), permettent d'identifier les forçages principaux et les mécanismes de transport des gaz qui en résultent. Cette thèse est dédiée au transport dans la géosphère, et le transfert des gaz à l'interface entre la géosphère et l'atmosphère est seulement évoqué, sans faire l'objet pour le moment d'une étude approfondie. Les bases pour une telle étude ont cependant été posées et servent de point de départ à un travail de post-doctorat confié à Claire Gréau.

Cette thèse est rédigée en français, toutefois, par égard aux deux membres non totalement francophones du jury, les articles sont écrits en anglais ainsi que tous les tableaux et figures et toutes les légendes (ces dernières également en français).

1.1 Les mécanismes de transport dans les milieux fracturés non saturés

Le transport d'une espèce chimique dans une roche a lieu soit par advection sous l'effet d'un gradient de pression, soit par diffusion sous l'effet d'un gradient de concentration. La dispersion des espèces lors du transport advectif peut être rapprochée de la diffusion, et n'est pas considérée explicitement ici.

Les roches, et en particulier les roches cristallines du Laboratoire Naturel de Rose-lend, sont des systèmes hétérogènes complexes, où l'écoulement des fluides a lieu préférentiellement dans quelques structures conductrices appelées fractures, dont certaines sont connectées, et qui constituent un ou plusieurs réseaux. Dans le reste de la roche, appelé matrice, un écoulement beaucoup plus lent des fluides a lieu dans le réseau des pores. La densité du réseau des fractures et la connectivité entre les fractures contrôlent ainsi les écoulements de fluides. Si le réseau de fractures est assez dense, avec des fractures plus petites que la taille caractéristique du système étudié, et avec une bonne connectivité entre les fractures, on peut en très bonne approximation utiliser un modèle équivalent à simple porosité pour représenter la roche poreuse fracturée (Liu *et al.*, 2003). Cependant, dans les roches présentant une double porosité, avec matrice poreuse et fractures, il devient nécessaire d'utiliser un modèle plus complexe à deux continuum (Doughty, 1999) pour interpréter certains résultats observés, en particulier le pompage barométrique (Nilson et Lie, 1990).

La zone non saturée est définie par la présence de deux fluides dans la porosité de la matrice et des fractures, et qui peuvent s'écouler : l'eau et l'air. Dans cette partie, on présente les équations qui régissent l'advection et la diffusion des fluides pour un milieu poreux, puis pour un milieu à double porosité (porosité matricielle et réseau de fractures), en conditions non saturées.

TABLEAU 1.1 – Symboles, unités et valeurs des paramètres thermodynamiques qui interviennent dans les équations d'advection et de diffusion.

TABLE 1.1 – *Symbols, units and values of the thermodynamic parameters used in advection and diffusion equations.*

Parameter	Symbol	Unit	at 25°C		at 5°C	
			water	air	water	air
Density	ρ	$kg \cdot m^{-3}$	997.1	1.184	1000.0	1.269
Dynamic viscosity	μ	$Pa \cdot s$	$1.01 \cdot 10^{-3}$	$1.8 \cdot 10^{-5}$	$1.79 \cdot 10^{-3}$	$1.7 \cdot 10^{-5}$
Acceleration of gravity	g	$m^2 \cdot s^{-1}$	9.81			

1.1.1 Transport en réponse à un gradient de pression : l'advection

L'écoulement laminaire d'un fluide newtonien (ici eau ou air) dans un milieu poreux sous l'effet des gradients de pression est décrit par la loi de Darcy (De Marsily, 1986) :

$$q_\beta = -k \frac{k_{r\beta} \cdot \rho_\beta}{\mu_\beta} (\nabla P_\beta - \rho_\beta \cdot \mathbf{g}) \quad (1.1)$$

où q_β est le flux massique de la phase β en $\text{kg} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$, k la perméabilité intrinsèque de la roche en m^2 , $k_{r\beta}$ la perméabilité relative de la phase β comprise entre 0 et 1, P_β la pression dans la phase β en Pa, ρ_β la masse volumique du fluide en $\text{kg} \cdot \text{m}^{-3}$, μ_β sa viscosité dynamique en Pa.s et \mathbf{g} l'accélération de la pesanteur en $\text{m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$. L'indice β vaut ℓ (resp. g) pour la phase liquide (resp. gazeuse). Le Tableau 1.1 indique les valeurs des paramètres thermodynamiques des deux phases. Pour simplifier, on considère ici un milieu isotrope homogène, dans lequel la perméabilité est constante, et ne dépend pas de la direction de l'écoulement.

Le transport d'un constituant par advection suit l'écoulement de la phase dans laquelle il se situe. L'advection est un mode de transport global, où tous les constituants présents dans une même phase migrent à la même vitesse. Le flux massique du constituant i dans la phase β est donné par :

$$q_\beta^i = X_\beta^i \times q_\beta \quad (1.2)$$

où X_β^i est la fraction massique du constituant i dans la phase β .

La pression dans la phase liquide s'exprime en fonction de la pression capillaire P_c (≤ 0) et de la pression dans la phase gazeuse :

$$P_\ell = P_g + P_c \quad (1.3)$$

Différents modèles existent pour exprimer les perméabilités relatives à l'eau et à l'air et la pression capillaire en fonction de la saturation en eau S_ℓ de la roche. La saturation est définie comme la proportion du volume de pores occupée par le fluide, et en comprise entre 0 et 1.

Le modèle le plus utilisé pour exprimer la perméabilité relative à l'eau est celui de Van Genuchten-Mualem (Van Genuchten, 1980; Mualem, 1976), qui s'écrit :

$$k_{r\ell} = S_e^{1/2} \left[1 - (1 - S_e^{1/m})^m \right]^2 \quad (1.4)$$

avec

$$S_e = \frac{S_\ell - S_{\ell r}}{S_{\ell \max} - S_{\ell r}} \quad (1.5)$$

où m est un paramètre sans unité, S_e est la saturation effective en eau, $S_{\ell \max}$ la saturation maximale de la roche et $S_{\ell r}$ la saturation résiduelle en eau. La perméabilité relative à l'air est donnée par le modèle de Brooks-Corey (Brooks et Corey, 1966) :

$$k_{rg} = (1 - S_e)^2 (1 - S_e^{3-2m}) \quad (1.6)$$

Un autre modèle très simple est parfois utilisé pour exprimer la perméabilité relative à l'air :

$$k_{rg} = 1 - k_{rl} \quad (1.7)$$

mais il ne sera pas utilisé ici car les études expérimentales montrent que la somme des perméabilités relatives est le plus souvent inférieure à 1. Les données expérimentales obtenues au laboratoire sur des échantillons de roche sont bien reproduites par les modèles de Van Genuchten-Mualem et de Brooks et Corey (Dane *et al.*, 1998).

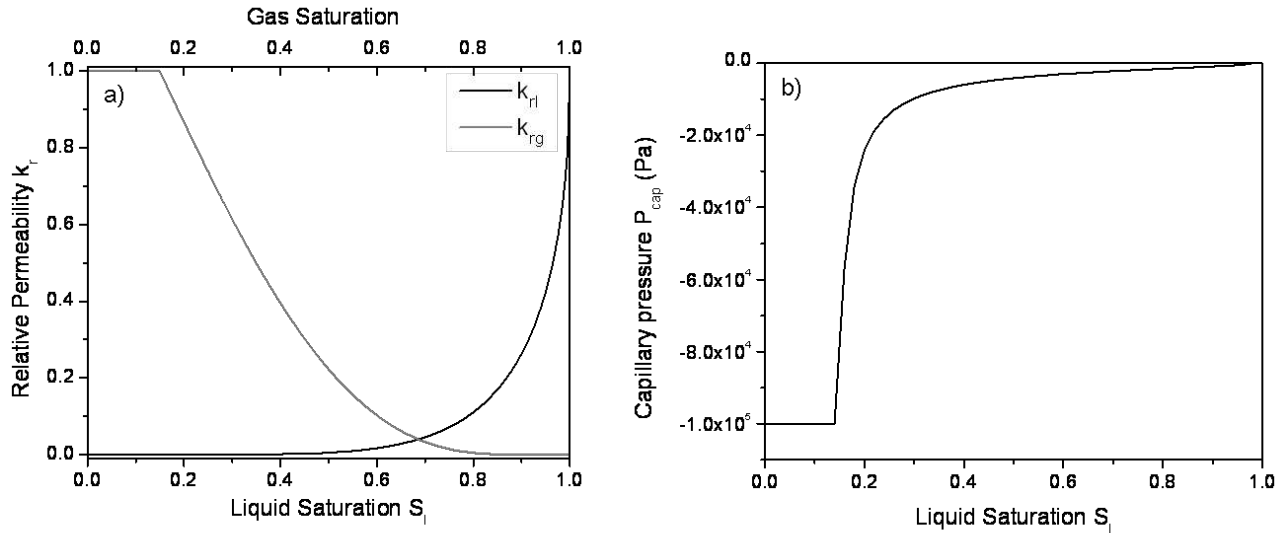


FIGURE 1.4 – Perméabilités relatives à l’eau et à l’air (a) et pression capillaire (b) en fonction de la saturation en eau de la roche, calculées selon les modèles de Van Genuchten-Mualem et Brooks-Corey, avec les valeurs de paramètres suivantes : $m=0,5$, $\alpha = 10^{-4} \text{ Pa}^{-1}$, $S_{lr} = 0,15$ et $S_{lmax} = 1,0$.

FIGURE 1.4 – Relative permeabilities of water and gas phases (a) and capillary pressure (b) as a function of water saturation, calculated with Van Genuchten-Mualem and Brooks-Corey models, with the following parameters' values : $m=0.5$, $\alpha = 10^{-4} \text{ Pa}^{-1}$, $S_{lr} = 0.15$ et $S_{lmax} = 1.0$.

Le modèle de Van Genuchten (Van Genuchten, 1980) est également le plus courant pour exprimer la pression capillaire :

$$P_{cap} = -\frac{1}{\alpha} (S_e^{-1/m} - 1)^{1-m} \quad (1.8)$$

où m est le même paramètre que précédemment, et α est l'inverse de la pression d'entrée d'air en Pa^{-1} . La Figure 1.4 montre un exemple des évolutions des perméabilités relatives et de la pression capillaire en fonction de la saturation en eau de la roche, pour des paramètres typiques de roches cristallines (Gimmi *et al.*, 1997). Pour un échantillon complètement saturé en eau, la perméabilité à l'eau correspond à la perméabilité intrinsèque de la roche. De la même manière, la perméabilité à l'air d'un échantillon complètement désaturé correspond à la perméabilité intrinsèque de la roche.

Dans les roches très peu perméables, lorsque la taille des pores est petite devant le libre parcours moyen des molécules, les collisions des molécules avec les parois des pores

entraînent une augmentation de la perméabilité. On parle d'effet Klinkenberg (Baehr et Hult, 1991). Dans les roches présentes au Laboratoire Naturel de Roselend, les pores sont suffisamment grands pour qu'il ne soit pas nécessaire de tenir compte de l'effet Klinkenberg.

Dans un milieu fracturé, l'écoulement peut n'avoir lieu que dans le réseau des fractures, avec une matrice imperméable. L'écoulement de fluide dans une fracture d'ouverture b (en m) est exprimé par la loi de Poiseuille, ce qui donne une perméabilité de la forme suivante, d'après Koudina *et al.* (1998) :

$$k_{frac} = \frac{b^2}{12} \quad (1.9)$$

1.1.2 Transport en réponse à un gradient de concentration : la diffusion

La diffusion est un processus de transport de la matière depuis une zone à forte concentration vers une zone à faible concentration, et résulte du mouvement aléatoire des molécules. La diffusion ne fait pas intervenir de déplacement global du fluide vecteur, eau ou air. Le flux diffusif F_g^i du constituant i (en $\text{kg} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$) dans la phase gazeuse est donné par la première loi de Fick, modifiée pour un milieu poreux :

$$F_g^i = -\rho_g \epsilon S_g \tau_g D_g^i \nabla X_g^i \quad (1.10)$$

où ϵ est la porosité de la roche, S_g la saturation en gaz, τ_g le coefficient de tortuosité de la phase gazeuse, D_g^i est le coefficient de diffusion moléculaire du constituant i dans l'air (en $\text{m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$), et ∇X_g^i le gradient de concentration du constituant i . Le modèle empirique de Millington et Quirk (1961) est fréquemment utilisé pour exprimer le coefficient de tortuosité dans les milieux poreux, sols ou roches :

$$\tau_g = S_g^{7/3} \epsilon^{1/3} \quad (1.11)$$

La dépendance à la pression et à la température des coefficients de diffusion moléculaire est supposée négligeable dans les conditions des expériences au Laboratoire Naturel de Roselend.

Lorsque les gradients de pression et de concentration coexistent, le transport a lieu à la fois par advection et par diffusion. Le flux total est donné par :

$$J_i = X_g^i \times q_g + F_g^i \quad (1.12)$$

La description quantitative du transport par advection et par diffusion dans un milieu poreux passe par la résolution de l'équation de conservation de la matière. Dans le cas le plus général, elle s'écrit :

$$\frac{dX_g^i}{dt} + \text{div}(J_i) + \Phi_i - \Lambda_i = 0 \quad (1.13)$$

où Φ_i et Λ_i sont respectivement les sources et les puits du constituant i . La résolution complète de cette équation passe par l'utilisation de modèles numériques.

Si un des deux mécanismes de transport, advection ou diffusion, est dominant, l'autre peut être négligé et l'équation de conservation de la matière peut être simplifiée. Le nombre de Péclet, Pe , permet de savoir si une telle simplification est possible. Ce nombre correspond au rapport entre le transport par advection et par diffusion, et est défini par :

$$Pe = \frac{LU}{D} = \frac{k\Delta P}{\mu \epsilon \tau_g D_g^i} \quad (1.14)$$

où U est la vitesse de Darcy (en m/s), et ΔP le gradient de pression (en Pa). Pour des gradients de pression de 5 mbar, typiques des fluctuations de pression naturelles mesurées au Laboratoire Naturel de Roselend dans cette étude, Pe est supérieur à 10. L'advection est donc le phénomène de transport prédominant, et la diffusion peut être négligée, au moins dans un premier temps.

Les Équations 1.1 et 1.10 régissent le transport des gaz dans les milieux poreux et font intervenir un certain nombre de paramètres du milieu poreux, de l'eau, de l'air et des gaz traceurs. Si certains paramètres du milieu comme la densité de la roche sont faciles à déterminer et varient peu d'un endroit à l'autre, d'autres paramètres comme la perméabilité, la porosité, les paramètres de Van Genuchten sont spécifiques de chaque site étudié et sont difficiles à déterminer. L'interprétation des résultats expérimentaux à l'aide des simulations numériques permet d'estimer, par modèle inverse, les valeurs de certains de ces paramètres pour les roches du Laboratoire Naturel de Roselend.

1.1.3 Transport dans les milieux à double perméabilité par diffusion des fluctuations de pression : le pompage barométrique

Les roches poreuses et fracturées sont caractérisées par une double porosité et une double perméabilité, avec un écoulement des fluides, eau et air, à la fois dans les fractures et dans la matrice. C'est le cas au Laboratoire Naturel de Roselend (Pili *et al.*, 2004, 2008a). Le pompage barométrique est le mécanisme de transport des gaz vers la surface sous l'effet des fluctuations de la pression atmosphérique (Chen, 1989; Nilson *et al.*, 1991; Martinez et Nilson, 1999; Massmann et Farrier, 1992). Quand la pression atmosphérique diminue, les gaz sont tirés hors de la roche, et inversement quand la pression augmente.

Dans un milieu poreux homogène, ces déplacements cycliques d'air par advection sont théoriquement réversibles, sans transport net des gaz vers l'atmosphère (sauf du fait de la dispersion). En revanche, dans un milieu à double perméabilité, une forte irréversibilité apparaît. Dans le cas où les fractures ont une composante verticale, un transport net des gaz vers la surface est créé. Lorsque la pression atmosphérique diminue, un gaz initialement présent à une profondeur donnée migre rapidement vers le haut dans les fractures très perméables. La matrice étant nettement moins perméable que les fractures, les variations de pression s'y propagent plus lentement. Le déphasage qui en résulte entraîne des gradients de pression et de concentration entre les fractures et la matrice. Le gaz va ainsi envahir la matrice à partir des bords des fractures, sous l'effet des gradients de pression et de concentration. La matrice constitue ainsi un réservoir qui stocke le gaz. Lorsque le gradient de pression entre les fractures et la matrice s'inverse, la matrice alimente les fractures en gaz. Après un cycle de pression atmosphérique, une partie du gaz est ainsi stocké dans la matrice, plus proche de la surface qu'initialement :

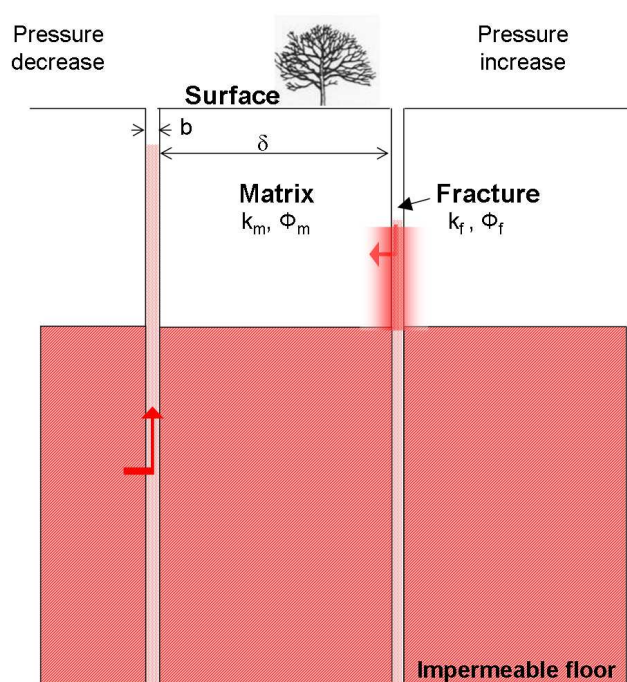


FIGURE 1.5 – Modèle simplifié de pompage barométrique. Schéma d'un milieu à double perméabilité avec des fractures verticales d'ouverture b séparées d'une distance δ par une matrice poreuse. Dans l'état initial, une zone (en rouge) est préalablement contaminée par un gaz traceur. La base du modèle est supposée imperméable. Quand la pression atmosphérique baisse, le gaz migre de la matrice vers les fractures, et monte verticalement dans les fractures ; puis quand la pression atmosphérique augmente, le gaz est stocké un peu plus haut dans la matrice. D'après Nilson *et al.* (1991).

FIGURE 1.5 – *Simplified model of barometric pumping. Diagram of a double permeability medium with vertical fractures of aperture b , separated by slabs of porous matrix of thickness δ . At initial conditions, a zone is already contaminated by a tracer gas at depth (red area). The bottom of the model is a no flow boundary. When atmospheric pressure decreases, gas migrates from matrix to fractures, and upward in the fractures ; when atmospheric pressure increases, gas is stored in the matrix, above the initial location. From Nilson *et al.* (1991).*

il y a eu un transport net vers la surface. Au cycle de pression suivant, le gaz va envahir une nouvelle zone de la matrice, encore plus proche de la surface (on parle d'effet cliquet, ou « ratcheting »). C'est l'introduction d'un contraste de perméabilité entre les fractures et la matrice qui crée cette irréversibilité et accélère le transport. Les gaz envahissent rapidement la totalité du milieu poreux, et les flux de gaz en surface atteignent alors un état stationnaire (Nilson *et al.*, 1991).

Si on considère le transport de deux gaz de coefficients de diffusion très différents, par exemple l'hélium, léger et qui diffuse fortement, et le SF_6 ou le xénon, plus gros et qui diffusent moins, des différences apparaissent. Dans les fractures très perméables, la diffusion est très lente par rapport à l'advection et est donc négligeable. En revanche, si la perméabilité de la matrice est très faible, le transport diffusif y devient d'une importance

semblable au transport advectif. Lors de chaque cycle de pression, l'hélium diffuse plus rapidement, est donc stocké plus loin dans la matrice, alors que le gaz moins diffusif migre moins loin et est plus facilement remobilisé lors du cycle de pression suivant. Cela se traduit par un effet de chromatographie inversée des gaz, avec l'arrivée en surface des gaz à plus faible coefficient de diffusion avant celle des gaz à plus fort coefficient de diffusion. Un tel fractionnement des gaz traceurs a été effectivement observé lors d'une expérience de traçage à l'échelle de 400 m, avec une arrivée en surface du SF_6 avant l' 3He (Carrigan *et al.*, 1996). La question est ensuite de savoir si un tel effet pourrait induire un fractionnement des isotopes du xénon, et ainsi modifier les rapports $^{135}Xe/^{131}Xe$ et $^{133m}Xe/^{131m}Xe$, jusqu'à oblitérer les valeurs caractéristiques d'une explosion nucléaire (Carrigan *et al.*, 2013; Lowrey *et al.*, 2013). La connaissance de ces processus, leur prise en compte dans les modèles et la détermination fine des coefficients de diffusion des différents isotopes du xénon ne sont pas encore assez avancées pour pouvoir apporter de réponse.

Plusieurs études sur la migration des gaz de la zone non saturée vers l'atmosphère sous l'effet du pompage barométrique ont été réalisées avec des modèles à double perméabilité, plus ou moins simplifiés (Nilson et Lie, 1990; Massmann et Farrier, 1992; Stauffer *et al.*, 2005; Sun et Carrigan, 2012). La Figure 1.5 présente un modèle 2D utilisé dans certaines études (Nilson et Lie, 1990; Lowrey *et al.*, 2012), avec une matrice poreuse et des fractures verticales. Dans ce type de modèle, le champ de pression dans les fractures est simplifié et considéré homogène. En raison de cette lacune, ces modèles sont considérés avec précaution.

Un autre type de modèle considère explicitement le réseau des fractures dans la matrice et permet un calcul précis des champs de pression en tout point. On parle de modèle de fractures discrètes (Discrete Fracture Model, DFM) (Mourzenko *et al.*, 2011). Les propriétés du milieu, si elles sont connues, peuvent être utilisées dans ce modèle. Les résultats obtenus dans le cadre d'une collaboration avec Pierre Adler (UPMC, UMR Sisyphe) sont présentés en Figure 1.6. Le traceur migre rapidement vers la surface dans les fractures, tout en envahissant la matrice depuis les fractures, ce qui est typique du pompage barométrique.

1.1.4 Sources et puits

La résolution complète du transport d'un constituant (Équation 1.13) nécessite de prendre en compte les termes de production (source) ou de consommation (puits).

On doit tenir compte de la désintégration radioactive des isotopes concernés (radon-222, radioxénons). Le terme puits est alors caractérisé par la constante de décroissance radioactive λ en s^{-1} .

Les gaz étudiés lors de cette thèse ne condensent pas dans les conditions ambiantes, et ils présentent une faible solubilité dans l'eau, qui est ici négligée (cf. Chapitre 3). Par ailleurs, les gaz étudiés n'interagissent pas avec les espèces minérales, en particulier par sorption ou par dissolution.

En ce qui concerne les sources de gaz, elle peuvent être de différentes origines et types : production de ^{222}Rn par désintégration du ^{226}Ra , injection ponctuelle de SF_6 , production de CO_2 dans la sol par la respiration des racines des plantes, production de

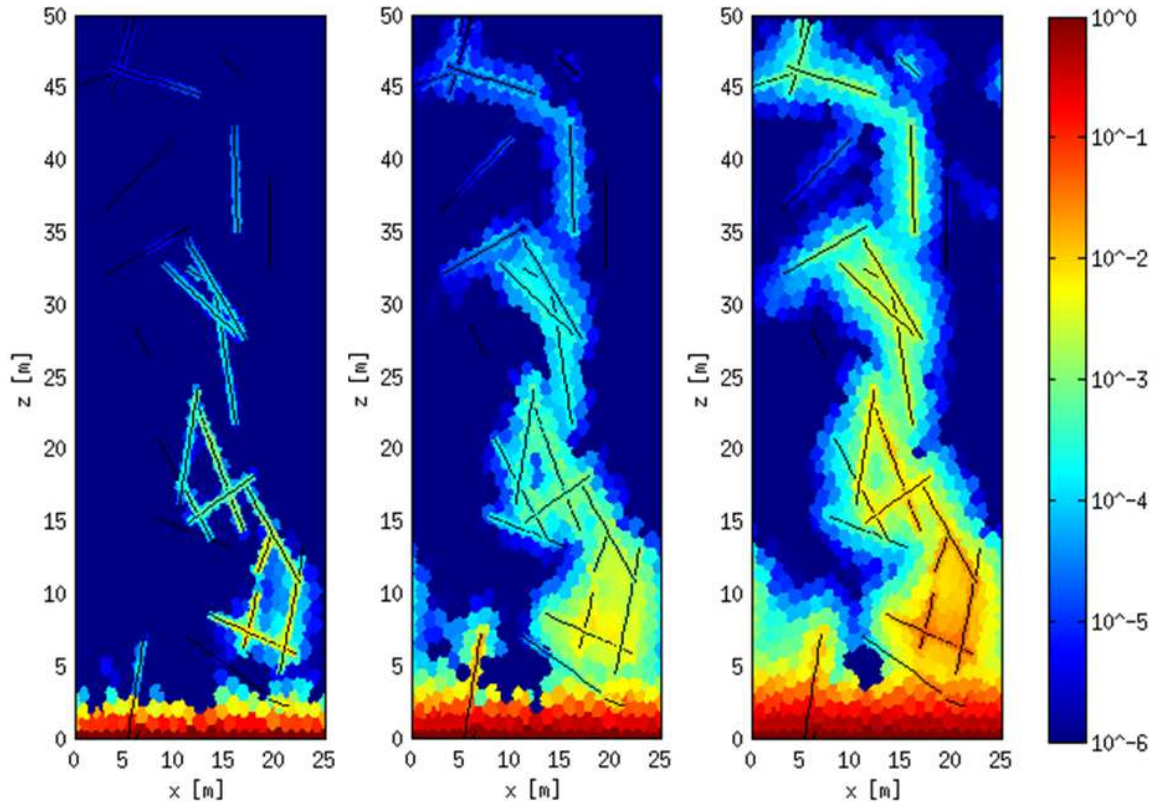


FIGURE 1.6 – Modèle de pompage barométrique obtenu pour un réseau 3D de fractures dans une matrice poreuse. Le milieu est soumis à des fluctuations de pression sinusoïdales en surface, et la distance de migration verticale est de 50 m. La concentration en traceur est fixée égale à 1 à la base du milieu, et est initialement nulle partout ailleurs. Le champ de concentration en traceur dans le plan vertical est présenté à trois moments successifs, et est exprimé par rapport à une concentration initiale unitaire. Le réseau de fractures modélisé est percolant : il est une représentation du réseau de fractures entre la chambre et la surface au Laboratoire Naturel de Roselend, selon Patriarche *et al.* (2007). D’après Pili *et al.* (2013).

FIGURE 1.6 – Model of barometric pumping obtained with a 3D fracture network in a porous matrix. Boundary conditions of sinusoidal pressure fluctuations are imposed on top of the medium. The vertical migration distance is 50 m. Tracer concentration is fixed at 1 at the bottom of the medium, and is otherwise initially equal to zero. Vertical cross-section of tracer concentration field is shown at three successive times, expressed as a proportion of the initial unit concentration. The fracture network is percolating ; it is one possible representation of the fracture network between the chamber and the surface at the Roselend Natural Laboratory, according to Patriarche *et al.* (2007). From Pili *et al.* (2013).

HCO_3^- dans la matrice rocheuse par dissolution de la calcite qui libère ensuite du CO_2 ... Ces sources peuvent être constantes, ou dépendre de paramètres du milieu (température, saturation en eau, pression...)

Dans le cadre de ce travail, on s’intéresse à des gaz inertes, hormis le CO_2 . Ce dernier

intervient en effet dans les réactions de dissolution des silicates et de la calcite, et de précipitation de la calcite (cf. Section 1.3). Dans ce cadre de cette thèse, l'étude de la dynamique du CO_2 au Laboratoire Naturel de Roselend est réalisée sur des échelles de temps courtes (inférieures à l'année) et des grandes échelles d'espace (supérieures au mètre), pour lesquelles on peut négliger cette réactivité.

1.2 Les expériences d'injection de traceurs gazeux en sites naturels

Pour aider à élaborer les protocoles expérimentaux et à réaliser des traçages avec des gaz au Laboratoire Naturel de Roselend, j'ai réalisé une revue bibliographique des traçages avec des gaz réalisés en site naturel, à des échelles allant de quelques mètres à plusieurs centaines de mètres. De nombreuses études expérimentales de la migration des gaz ont en effet été réalisées dans différents contextes hydrogéologiques, plus ou moins proches de ceux du Laboratoire Naturel de Roselend. Cette revue est une base pour choisir les traceurs et les conditions d'injection adaptées au site et aux questions auxquelles on doit répondre. Elle donne également des ordres de grandeurs des temps de percée des traceurs, afin de dimensionner les expériences.

Les traçages ont été regroupés en quatre grands groupes, selon les problématiques auxquels ils répondent, ce qui correspond également aux contextes géologique et hydrogéologique dans lesquels ils ont été réalisés. Les caractéristiques et résultats principaux des traçages, regroupés par familles, sont présentés dans le Tableau 1.2. Pour chaque groupe, après une présentation du contexte scientifique dans lequel les traçages ont été réalisés, les différences majeures avec le Laboratoire Naturel de Roselend sont mises en perspective ainsi que les résultats qui sont pertinents et utiles pour la réalisation des traçages.

1.2.1 Compréhension de la migration des gaz produits lors d'une explosion nucléaire souterraine

Il existe à notre connaissance 7 expériences d'injection de gaz ayant été réalisées pour comprendre la migration des gaz dans les roches suite à une explosion nucléaire souterraine, et qui sont donc particulièrement intéressantes pour les traçages réalisés dans le cadre de notre projet de recherche.

La phénoménologie d'une explosion nucléaire souterraine est ici brièvement présentée. Après une explosion nucléaire souterraine, une cavité est créée, dans laquelle sont contenus des gaz à une pression de plusieurs centaines de bar et une température de plusieurs milliers de degrés. Une zone très fracturée et à forte perméabilité est formée autour de la cavité. La pression et la température diminuent ensuite dans la cavité, et dans les heures qui suivent l'explosion, le toit de la cavité s'effondre. Une cheminée est créée, où la porosité et la perméabilité sont élevées (Derlich et Supiot, 1969; Boardman *et al.*, 1964; Bouchez et Lecomte, 2000). Dans les heures qui suivent une explosion nucléaire, les gaz produits migrent sous l'effet de la pression de quelques dizaines à centaines de bar régnant dans la cavité. Puis dans les jours et les mois qui suivent, la migration est contrôlée par les mouvements de fluides, notamment la vapeur d'eau, créés par les gradients de température. Pour finir, c'est le pompage barométrique qui devient le mécanisme prépondérant (Sun et Carrigan, 2012).

Les conditions extrêmes qui existent après une explosion nucléaire ne peuvent pas facilement être reproduites pour des expériences. Le Non Proliferation Experiment est la seule expérience, réalisée avec une explosion chimique, qui permet de reproduire le champ de pression après une explosion nucléaire souterraine. Aucune expérience ne

reproduit le champ de température. Les autres expériences de traçages ne cherchent pas à reproduire le champ de pression, mais se concentrent sur la migration des gaz dans ou depuis la cavité-cheminée.

Toutes ces expériences ont été réalisées au Nevada Test Site (NTS, États-Unis), à quelques centaines de mètres de profondeur en zone non saturée, dans des tufs stratifiés présentant des fractures verticales. Les traceurs utilisés sont le SF_6 et les fréons, des gaz qui sont quasiment absents à l'état naturel, et qui peuvent être mesurés à des niveaux de dilution de l'ordre de la ppt (10^{-12}) par chromatographie en phase gazeuse et détecteur à capture d'électrons (GC-ECD). Il faut noter que ce type de mesure, impliquant l'utilisation d'une source radioactive, est devenu moins facile d'accès ces dernières années, ce qui limite l'usage de ces traceurs.

Dans les années 70 et 80, alors que de nombreux essais nucléaires souterrains étaient réalisés, deux groupes d'expériences ont été menés dans le cadre de l'étude de leur confinement. Trois expériences d'injection de gaz traceurs ont été menées à la base des cheminées des essais Mighty Epic, Ming Blade et Dining Car (Peterson *et al.*, 1977a,b, 1978), tous trois réalisés dans des tunnels. Ces expériences ont servi à déterminer la perméabilité et la porosité de la cheminée, et à s'assurer que la présence de la cheminée ne constitue pas un risque de fuite accrue des gaz lors de la réalisation d'une explosion nucléaire dans une zone proche. Aucune sortie de traceurs n'a pu être mesurée en surface, et la cheminée agit à l'inverse comme une zone à forte porosité qui permet de contenir les gaz.

Deux autres expériences ont été réalisées au sommet des cheminées des essais Kapelli et Tierra (Lagus *et al.*, 1994), après lesquels des fuites tardives de gaz radioactifs avaient été mesurées, quelques jours à centaines de jours après les explosions. Ces expériences ont permis de valider que le mécanisme de transport à l'origine de ces fuites tardives est le pompage barométrique. Ces expériences permettent de distinguer deux types de transport des gaz traceurs injectés : l'advection radiale sous l'effet d'une surpression lors de l'injection, et le pompage barométrique dans les fractures majoritairement verticales sous l'effet des fluctuations de pression atmosphérique. Les gaz traceurs ont été détectés en plusieurs endroits en surface, et ce pendant plusieurs années.

Depuis les années 1990, avec l'arrêt des essais nucléaires et la mise en place du Tice, les problématiques ont changé. Deux expériences ont ainsi été réalisées dans le cadre de la détection des essais nucléaires par les gaz rares radioactifs. En 1993, l'expérience « Non Proliferation Experiment » (NPE) a été réalisé explicitement dans le but de valider le principe de la détection d'une explosion nucléaire souterraine par la mesure des radionucléides en surface, dans le cadre de la surveillance du futur Tice (Carrigan *et al.*, 1996). Une explosion chimique équivalant à un essai nucléaire de 1 kt a été réalisée à 400 m de profondeur dans une cavité n'ayant jamais servi à un tir, pour mimer une explosion nucléaire souterraine. Le traceur SF_6 a été utilisé comme mimétique du xénon. Un autre traceur a été utilisé, l'hélium-3, qui présente le même avantage que le SF_6 d'avoir une limite de détection très faible, mais qui est beaucoup plus léger et présente un coefficient de diffusion 10 fois plus élevé. A la différence des injections à Kapelli et Tierra, la surpression initiale dans la cavité d'injection était très grande (d'autant plus qu'une explosion chimique est susceptible de générer plus de gaz qu'une explosion nucléaire), et se rapprochait plus des conditions réelles lors d'une explosion nucléaire. Le SF_6 a été détecté en surface au bout de 50 jours. La sortie de l'hélium-3 au

bout de 375 jours, beaucoup plus tardive que celle du SF_6 , indique un fractionnement lors du transport en fonction des coefficients de diffusion et donc des masses (Carrigan *et al.*, 1996). La modélisation numérique réalisée avec le code NUFT (Carrigan *et al.*, 1996; Sun et Carrigan, 2012) a permis de reproduire ces résultats et de déterminer dans le même contexte le temps d'arrivée en surface du radioxénon après un essai nucléaire. Cette expérience montre que le mécanisme de transport des gaz après une explosion souterraine est le pompage barométrique, qui associe la migration verticale dans les fractures à la migration latérale dans la matrice.

Depuis 2012, un nouveau projet est mené au NNSS (Nevada National Security Site, anciennement NTS), sur le site de Test Bed #1. Il consiste à injecter des traceurs dans la cheminée d'une ancienne explosion nucléaire, à 200 m de profondeur. Une première phase d'injection de fréon permet de développer et valider les différents protocoles expérimentaux, avant l'injection de traceurs radioactifs (Carrigan *et al.*, 2013; Bowyer *et al.*, 2013). Ces expériences permettront de valider les méthodologies prévues pour les inspections sur site.

Toutes ces expériences ont été réalisées à plusieurs centaines de mètres de profondeur, ce qui est typique des essais nucléaires souterrains, mais supérieur d'un facteur 1 à 10 aux 55 m offerts par le Laboratoire Naturel de Roselend. Les roches du NTS et du Laboratoire Naturel de Roselend ont des perméabilités assez proches, avec des fractures sub-verticales dans les deux cas. Ces similitudes laissent penser que les processus de transfert après une injection seront plus rapides au Laboratoire Naturel de Roselend, moins profond. Par ailleurs, alors que le NTS est un site étendu tant en surface qu'en profondeur qu'il est difficile de connaître en détails, le Laboratoire Naturel de Roselend est un site plus petit, étudié depuis plus de 15 ans et particulièrement bien instrumenté.

Malgré cette différence d'échelle, les études menées au Laboratoire Naturel de Roselend sont tout à fait pertinentes pour la compréhension de la migration des gaz à partir des essais nucléaires souterrains. D'une part, les expériences de traçages aux gaz réalisés sur une échelle de 50 m entre la chambre et la surface sont un analogue en modèle réduit, à une échelle de $1/4$ à $1/20^{\text{ème}}$, permettant de comprendre la migration des gaz depuis une cavité-cheminée située entre 200 et 1000 m de profondeur, sous l'effet soit de la surpression initiale dans les jours voire les mois qui suivent l'explosion, soit du pompage barométrique, dans les mois et les années qui suivent. D'autre part, le Laboratoire Naturel de Roselend est un analogue direct pour les essais nucléaires dont le sommet de la cavité-cheminée se trouverait à une profondeur de 55 m. Les critères de confinement qui ont été utilisés correspondent à des profondeurs plus importantes (Figure 1.7), mais certains essais nucléaires non contenus réalisés dans le passé ont effectivement conduit à une épaisseur de couverture proche de 55 m après développement de la cavité-cheminée (Figure 1.7).

Ces premières expériences identifient les gaz traceurs, SF_6 , fréons et 3He , qui ont des limites de détection très basses, et qui permettent l'identification de fractionnements. Il faut également distinguer les injections en surpression, et celles à pression ambiante. Les surpressions réalisables expérimentalement au Laboratoire Naturel de Roselend sont inférieures à quelques centaines de millibars.

La simulation numérique a permis l'interprétation de ces expériences, pour identifier les paramètres du milieu les plus influents, qui sont la perméabilité des fractures, leur densité et leur ouverture. Si ces paramètres ne sont pas connus indépendamment, ils

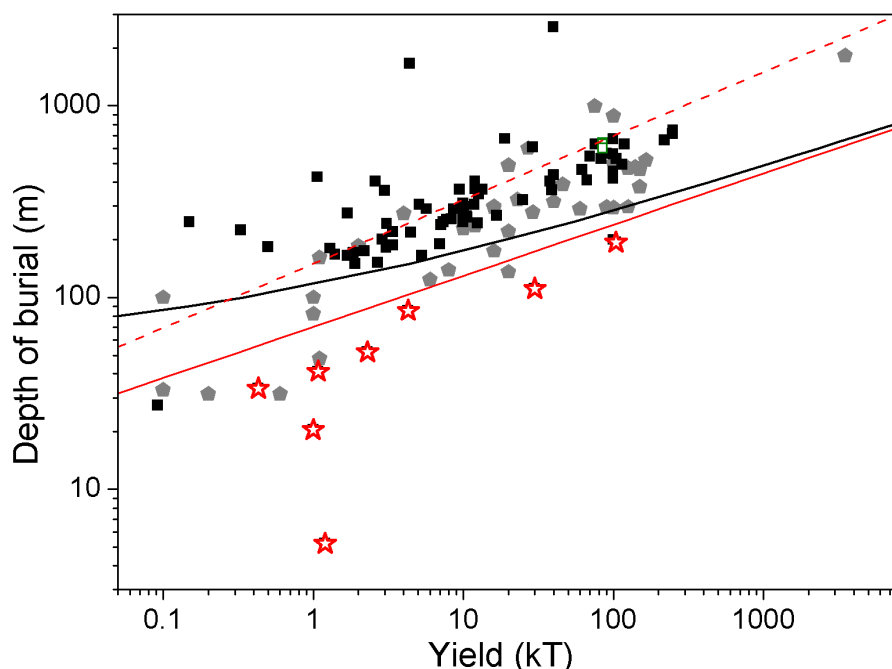


FIGURE 1.7 – Relation entre la profondeur (en m) et l'énergie d'essais nucléaires souterrains (en kt) ayant conduit à des sorties de gaz radioactifs dans l'atmosphère. Les symboles noirs correspondent à des essais américains au Nevada Test Site (données d'après Schoengold *et al.*, 1996). Les symboles gris correspondent à des essais soviétiques (données d'après Bocharov *et al.*, 1989; Khalturin *et al.*, 2005; Adushkin et Leith, 2001). Les étoiles rouges correspondent à des tests ayant conduit à la formation de cratères. La ligne rouge est la limite théorique de cratérisation, quand le haut de la cheminée d'effondrement atteint la surface. La ligne noire correspond à une distance de 55 m entre le haut de la cheminée et la surface, identique à la distance de migration lors des traçages au Laboratoire Naturel de Roselend. La ligne pointillée rouge est un critère de confinement des essais utilisé dans les roches granitiques (d'après Carothers, 1995), pour une profondeur normalisée de $150 \text{ m/kt}^{1/3}$.

FIGURE 1.7 – *Depth of burial (in m) versus yield (in kt) of underground nuclear tests that led to releases of radioactive gases in the atmosphere. Black symbols correspond to US tests at NTS (data from Schoengold et al., 1996). Grey symbols correspond to USSR tests (data from Bocharov et al., 1989; Khalturin et al., 2005; Adushkin et Leith, 2001). Red stars correspond to tests that led to the formation of craters. The red line corresponds to the theoretical craterisation limit, i.e. the top of the chimney reaching the surface. The black line corresponds to a 55 m distance between the top of the chimney and the surface, same distance as in the Roselend Natural Laboratory. The red dashed line corresponds to a containment criterion used in granitic rocks (according to Carothers, 1995), and a scaled depth of burial of $150 \text{ m/kt}^{1/3}$.*

peuvent être estimés par inversion des résultats des traçages.

Aucun traçage ne pouvant reproduire exactement toutes les conditions d'une explosion nucléaire souterraine, ces expériences permettent d'identifier les analogies utilisées pour étudier les étapes clés de migration des gaz. Dans les quelques heures qui suivent

une explosion nucléaire, la pression dans et autour de la cavité est d'une centaine à une dizaine de bar. L'injection de traceurs avec une surpression, même de quelques mbar, permet d'étudier l'advection des gaz à travers les roches sous l'effet des fortes surpressions initiales créées lors d'un essai. Les expériences présentées ci-dessus montrent que cette advection reste limitée dans l'espace et dans le temps, et dans la plupart des cas ne conduit pas à une sortie en surface. Les fractures et failles apparaissent cependant comme les zones de migration préférentielle rapide des gaz vers la surface, avec une dilution qui dépend de la taille des fractures. Une fois la surpression amortie, la phase suivante de migration sous l'effet du pompage barométrique est ensuite reproduite, qui conduit à des sorties tardives de gaz en surface. La détection des traceurs en surface est alors plus probable lors des périodes de baisse de la pression atmosphérique (Carrigan *et al.*, 1996).

TABLEAU 1.2 – Caractéristiques d’expériences d’injection de traceurs gazeux en site naturel.

TABLE 1.2 – *Characteristics of tracer gases injection experiments.*

Relevant Domain	Name	Depth (m)	Rock	Tracer	Injected volume	Pressure	Breakthrough time
Underground nuclear explosion	Ming Blade, Dininig Car	350	Tufs, chimney (bottom)	freon 13B1	5400-4600 L	≤100 mbar	no tracer dectection
	Mighty Epic			SF_6			
	Kapelli, Tierra	~400	Tufs, chimney (top)	freon 13B1	7000 L	30-55 mbar	30-100 days
	NPE	400	Tufs	SF_6 3He	8000 L 1300 L	~ 10 ⁶ bar	50 days 375 days
Cavity and fault detection	Test Bed #1	200	Tufs, chimney	freon 12B2	-	40 mbar	4 days
	Cavity	4-15	Fractured limestone	CO ₂ He	6-150 L	0	1-18 h
	Faults	20 - 50*	Clay	CO ₂ He	1500 - 90000 L	1 - 2 bar	5-110 h
Waste disposal	URL	40*	Granite, fault	He	24000 L	4 bar	2 days
	Grimsel (GAM)	450*	Granite shear zone	He, Xe, Ar SF ₆ , N ₂ , H ₂ S	0.01 to 0.2 L	350 mbar	1 to 6 h for 1.5 m
	Aspö (Lasgit)	420*	Granite, bentonite	He, Ne	1.26 L	≤59 bar	-
	Yucca Mountain	300	Tufs	SF_6	≤0.5 L	-	7 - 48 min for 2 - 6 m
	National Reactor Testing Station	33	Basalts, Sediments	¹³³ Xe air	3.6·10 ¹³ Bq 28·10 ³ m ³	100 mbar	no tracer dectection
CO ₂ sequestration	Weyburn-Midale	1400*	Carbonates	CO ₂	18·10 ⁶ t	-	no tracer dectection
	Pembina Cardium	1650*	Sandstone	CO ₂	75·10 ³ t	-	-
	West Pearl Queen	1400*	Oil bearing sandstone	CO ₂ fluoroalcanes	2 090 t	≤ 200 bar	few days (around the well)
	ZERT	2,5*	Sand, gravel, clayey soil	CO ₂	1 t + 2,1 t	≈0	2 h
	CO ₂ Vadose	7	Carbonates	CO ₂ He Kr	11200 L	≤2 mbar	1 day (He) 29 days (CO ₂) for 3.6 m

* saturated zone

1.2.2 Compréhension et identification des connexions entre des cavités souterraines ou des failles et la surface

Dans les années 90, dans le cadre de recherches sur le développement de méthodes de détection de cavités souterraines et/ou de zones de failles par la mesure des gaz du sol, CO_2 , He et Rn, des expériences d'injection de traceurs gazeux dans des cavités ont été réalisées afin de comprendre les connexions existant entre ces cavités de sub-surface et la surface.

Un premier groupe de deux expériences a été réalisé à partir de cavités à faible profondeur, en zone non saturée, dans des roches fracturées (Gregory et Durrance, 1985; Sibley, 1992). Les conditions expérimentales et le contexte hydrogéologique sont proches de ceux du Laboratoire Naturel de Roselend, mais les profondeurs d'injection sont nettement plus faibles (cf Tableau 1.2), et les traceurs ont été injectés dans des conditions peu contrôlées, en particulier en ce qui concerne l'étanchéité de la zone d'injection.

Un deuxième groupe de quatre expériences correspond à des injections de CO_2 et He dans des forages, au niveau d'intervalles recoupant des fractures connues. Ces expériences ont été réalisées à des profondeurs proches de celles du Laboratoire Naturel de Roselend, mais dans des roches argileuses et en zone saturée (Duddridge *et al.*, 1995; Lineham *et al.*, 1996; Ciotoli *et al.*, 2005). Les injections ont par ailleurs été réalisées avec des surpressions importantes (cf Tableau 1.2), nécessaires pour que les gaz injectés repoussent l'eau et migrent en zone saturée. Les analogies avec les traçages réalisés au Laboratoire Naturel de Roselend sont par conséquent limitées. La migration préférentielle des gaz au niveau des fractures ou des failles est cependant une question importante au Laboratoire Naturel de Roselend, où le réseau de fractures entre le tunnel et la surface est percolant (Pili *et al.*, 2008a).

Avec ces expériences, un nouveau type de traceurs gazeux apparaît, CO_2 et He, qui sont présents naturellement en quantités importantes en sub-surface comme dans l'atmosphère. Leur utilisation est donc plus complexe que celle du SF_6 ou des fréons : les limites de détection sont beaucoup plus élevées, de l'ordre de la ppm (10^{-6}). Il est nécessaire de mesurer et caractériser leur fond géochimique avant le traçage, afin de pouvoir distinguer la percée du traceur des variations naturelles, qui peuvent être de grande ampleur. Lors de plusieurs de ces expériences, le CO_2 n'a ainsi pas été détecté en surface.

1.2.3 Évaluation de la sûreté de stockages géologiques de déchets nucléaires

La solution envisagée pour le devenir des déchets nucléaires à moyenne et haute activité et à vie longue est le stockage en couches géologiques profondes (ANDRA, 2013). Aux échelles de temps de plusieurs milliers voire centaines de milliers d'années sur lesquelles la fiabilité du stockage des déchets doit être considérée, la corrosion des métaux et la dégradation des substances organiques environnantes va produire des gaz, en particulier de l'hydrogène (Didier, 2012; Didier *et al.*, 2012), mais également de l'iode et du xénon. Les processus concernés étant très lents, il faut noter que beaucoup d'études sur la production et la migration des gaz à partir des colis de déchets se basent sur la

modélisation numérique (Mishra et Zuidema, 1991). Pour éviter que les radionucléides ne migrent vers la surface ou dans la nappe, les roches envisagées pour ce stockage sont choisies pour leur très faible perméabilité, le plus souvent inférieure à 10^{-20} m², et leur faible degré de fracturation. Deux types de roches ont été choisis pour l'installation de la plupart des laboratoires souterrains de recherche, et à terme pour le stockage des déchets à plusieurs centaines de mètres de profondeur en zone saturée : les roches cristallines et les argiles.

Des études expérimentales sur la migration des gaz ont été menées dans les laboratoires souterrains de Underground Research Laboratory (Canada, Gascoyne et Wuschke, 1997), Grimsel Test Site (Suisse, Senger *et al.*, 1998; Jodar *et al.*, 2011) et Aspö Hard Rock Laboratory (Suède, Cuss *et al.*, 2011), situés dans des roches cristallines fracturées similaires à celles du Laboratoire Naturel de Roselend. D'autres études expérimentales ont été réalisées dans des laboratoires souterrains situés dans des roches argileuses, à Mont Terri (Suisse, Wieczorek *et al.*, 2007) et au Laboratoire Souterrain de Meuse/Haute-Marne (France, Cailteau *et al.*, 2011). Toutes ces études concernent cependant des conditions hydrogéologiques de perméabilité et/ou de saturation différentes de celles du Laboratoire Naturel de Roselend et ne sont pas directement exploitables. On retiendra l'utilisation d'un mélange de plusieurs traceurs aux propriétés différentes, qui facilite l'identification des mécanismes mis en jeu à partir des arrivées successives ou simultanées.

Aux États-Unis, le site de Yucca Mountain qui a longtemps été envisagé pour le stockage avant l'arrêt récent du projet, se distingue par une lithologie différente (tufs stratifiés), et surtout par un stockage en zone non saturée, à 300 m de profondeur. Dans une région aride où l'infiltration annuelle est très faible, les gaz et liquides produits mettraient ainsi des temps très longs avant d'atteindre la surface ou la nappe (Wu *et al.*, 2004). Deux séries d'expériences de traçage au SF₆ ont été réalisées dans des forages de la paroi du tunnel Exploratory Studies Facility (LeCain, 1997; Freifeld, 2001), pour obtenir la porosité des fractures, et étudier le phénomène de diffusion. Malgré une différence de nature des roches, les conditions hydrogéologiques sont semblables à Yucca Mountain et au Laboratoire Naturel de Roselend. Ces expériences sont donc tout à fait pertinentes quant aux traçages à l'échelle métrique dans les forages du Laboratoire Naturel de Roselend.

Une dernière expérience de traçage mérite d'être mentionnée. Elle a utilisé du radioxénon, traceur qui nous intéresse directement. L'expérience a été réalisée en 1969 au National Reactor Testing Station (Idaho, États-Unis) dans le cadre de l'évaluation d'un projet de stockage de déchets radioactifs gazeux par injection en sub-surface (Robertson, 1969). Même si les quantités de radioactivités mises en œuvre ont été très importantes au regard des législations actuelles, et les moyens de détections utilisés peu précis, cette expérience peut être considérée comme une démonstration de faisabilité. C'est à notre connaissance le seul cas d'utilisation du radioxénon, du moins avant les expériences prévues en 2013 à Test Bed #1 au Nevada (Bowyer *et al.*, 2013).

1.2.4 Surveillance de l'intégrité de la séquestration géologique du CO_2

Suivi du CO_2 injecté à grande profondeur dans les sites industriels de stockage. Depuis quelques années, la séquestration géologique du CO_2 dans des aquifères profonds fait l'objet d'études et de développements scientifiques et industriels. L'injection de grandes quantités de CO_2 en profondeur est également réalisée dans des réservoirs de pétrole appauvris, dans les projets d'EOR (Enhanced Oil Recovery), pour améliorer les taux de récupération des hydrocarbures du réservoir. Ces projets soulèvent les questions de la réalité effective du stockage du CO_2 et de l'intégrité du réservoir : quels sont les facteurs qui favorisent la migration du CO_2 vers la surface ? Comment détecter la présence de fuite en surface ? Pour répondre à ces questions, de nombreuses études numériques et expérimentales sont menées. Sans vouloir présenter une revue exhaustive, le Tableau 1.2 mentionne des études expérimentales sur la migration des gaz dans trois sites d'injection de CO_2 : Weyburn-Midale CO_2 Monitoring and Storage Project et Pembina Cardium CO_2 Monitoring Project au Canada (Johnson *et al.*, 2009; Beaubien *et al.*, 2013), et West Pearl Queen aux États-Unis (Wells *et al.*, 2007). Ces études concernent la migration du CO_2 en phase supercritique à grande profondeur, dans des roches saturées en saumure, et ne peuvent donc pas facilement être exploitées pour le Laboratoire Naturel de Roselend. En revanche, on pourra s'inspirer des méthodes de détection utilisées, en particulier la co-injection de traceurs (Wells *et al.*, 2007), et l'apport de la géochimie et des isotopes stables du CO_2 pour discriminer le CO_2 injecté du CO_2 d'origine biologique, présent en quantités importantes en surface (Johnson *et al.*, 2011).

Injection de CO_2 à faible profondeur et développement de méthodes de détection en surface. Les grands projets d'échelle industrielle présentés dans le paragraphe précédent ne permettent pas la connaissance du système nécessaire à l'interprétation des résultats, complexes, des traçages. Deux sites expérimentaux de recherche existent ainsi, qui sont dédiés à l'étude des processus de migration du CO_2 en sub-surface et aux techniques pour détecter et quantifier les fuites de CO_2 à partir de sites de stockage : le site ZERT (Zero Emission Research and Technology Center) aux États-Unis (Lewicki *et al.*, 2007b; Lewicki et Hilley, 2012), et une ancienne carrière souterraine à Saint-Émilion pour le projet CO_2 Vadose, en France (Loisy *et al.*, 2013; Cohen *et al.*, 2013). Ces sites permettent la réalisation d'expériences de traçage sur des distances de quelques mètres, pour développer et valider des méthodes de détection en surface (Humphries *et al.*, 2008), tant géophysiques (Male *et al.*, 2010; Strazisar *et al.*, 2009) que géochimiques (Krevor *et al.*, 2010; Barr *et al.*, 2011), ainsi que l'utilisation de la modélisation numérique (Garcia *et al.*, 2013).

Dans ces deux sites, les traceurs sont injectés à faible profondeur, en zone saturée pour ZERT, et les mécanismes de migration ne peuvent donc être transposés au Laboratoire Naturel de Roselend. Dans l'hypothèse de la réalisation d'un traçage utilisant du CO_2 à Roselend, les résultats obtenus sur ces deux sites permettront un choix éclairé des méthodes de suivi en surface les plus adaptées. Les résultats obtenus sur le site de CO_2 Vadose soulignent également l'intérêt de réaliser une première expérience avec des traceurs mimétiques des traceurs d'intérêt, pour valider le dimensionnement et les protocoles expérimentaux, et assurer ainsi la qualité des résultats lors de la deuxième

expérience. Sur le site de Saint-Émilion, la présence d'une zone argileuse au dessus de la zone d'injection des traceurs a ainsi été découverte suite à la première injection, et la migration des traceurs a seulement pu être suivie horizontalement et pas verticalement comme prévu initialement. L'hétérogénéité spatiale du milieu apparaît comme un paramètre qui contrôle fortement la migration des gaz, mais qui reste difficile à caractériser autrement qu'*a posteriori* à partir des résultats des traçages.

1.2.5 Conclusion

Depuis les années 70, de nombreuses expériences d'injection de traceurs gazeux ont été réalisées. Elles ont permis de comprendre et quantifier la migration des gaz dans différents contextes hydrogéologiques, à différentes profondeurs,. Elles ont surtout été développées pour répondre à des problématiques scientifiques et industrielles variées. Les résultats obtenus dans les expériences mentionnées dans le Tableau 1.2 ne suffisent cependant pas pour répondre aux questions que l'on se pose dans le cadre de cette thèse, et plus largement dans le cadre du projet ROSELEND-Gas. La revue bibliographique a ainsi permis de synthétiser des informations qui seront utiles pour préparer, réaliser et interpréter les traçages effectués à Roselend.

Deux groupes de traceurs ont été identifiés qui pourront être utilisés. Pour commencer, il est plus aisé d'utiliser ceux qui ont un fond géochimique très faible et dont de faibles concentrations pourront être détectées, tels SF_6 , les fréons ou 3He , avant de pouvoir utiliser ceux qui sont présents naturellement (CO_2 ou He) et dont les variations naturelles devront être bien étudiées pour les distinguer de la percée du traceur.

Les protocoles d'injection utilisés dans la grande majorité des expériences mentionnées font intervenir des obturateurs gonflables, pour isoler l'intervalle dans lequel les traceurs sont injectés. Les infrastructures développées au Laboratoire Naturel de Roselend devront également permettre l'isolement de la zone d'injection voire l'isolement de certaines zones d'observation.

Enfin, la simulation numérique des résultats expérimentaux apparaît comme une étape clé de l'interprétation des traçages, pour valider les mécanismes de transport, calibrer les modèles et transposer les résultats à d'autres contextes. La complexité des modèles utilisés est variable, et les modèles simples permettent le plus souvent une bonne compréhension des phénomènes.

1.3 Le Laboratoire Naturel de Roselend



FIGURE 1.8 – Localisation du Laboratoire Naturel de Roselend (cercle noir) et de la crête de Sur-Frêtes (carré blanc) en Savoie (Alpes françaises), sur la commune de Beaufort-sur-Doron (carte IGN au 100 000^{ème}).

FIGURE 1.8 – Setting of the Roselend Natural Laboratory (black circle) and the Sur-Frêtes ridge (white square) in Savoie (French Alps), in the city of Beaufort (map from IGN, scale 1/100 000).

Le Laboratoire Naturel de Roselend est situé au bord du lac de Roselend, dans le massif du Beaufortain, sur la commune de Beaufort-sur-Doron (Savoie, Figures 1.8 et 1.9). Centré autour d'un tunnel, le Laboratoire Naturel de Roselend est un laboratoire en site naturel dédié à l'étude des réponses du milieu naturel aux perturbations d'origines naturelles et anthropiques. Le Laboratoire Naturel de Roselend offre un cadre privilégié pour le développement d'instrumentations et d'expérimentations à des échelles allant du mètre à plusieurs dizaines de mètres.

A la fin des années 1980, Haroun Tazieff, qui avait été commissaire aux risques naturels majeurs puis secrétaire d'État, demande au CEA d'implanter et de tester une méthode de prédiction des tremblements de terre basée sur la mesure des courants électriques dans le sol (Maron *et al.*, 1993) : c'est la méthode VAN (Varotsos et Alexopoulos, 1984), du nom des trois physiciens grecs qui l'ont inventée (Varostos, Alexopoulos et Nornicos). C'est ainsi que la crête de Sur-Frêtes (Figure 1.8) devient une station VAN. En 1994, la méthode VAN est abandonnée car elle n'apporte pas de résultats concluants. Il sera montré ultérieurement que ces signaux électrosismiques sont en fait liés à des pertes de courant du réseau électrique (Van Ngoc *et al.*, 2001). Le CEA lance

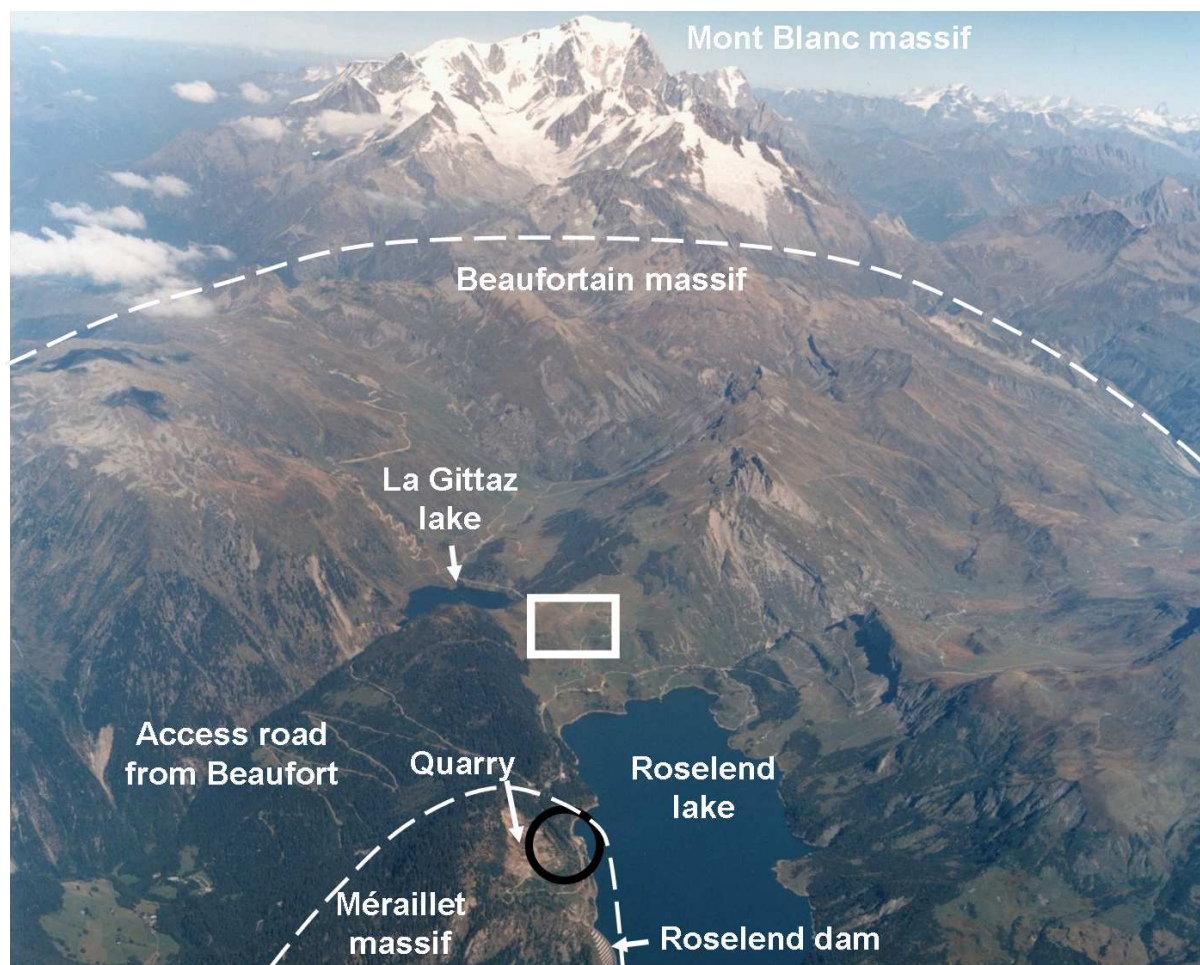


FIGURE 1.9 – Vue aérienne du Laboratoire Naturel de Roselend (cercle noir). La crête de Sur-Frêtes (carré blanc) sépare le lac de Roselend de celui de la Gittaz, plus petit.

FIGURE 1.9 – Aerial view of the Roselend Natural Laboratory (black circle). The Sur-Frêtes ridge (white square) separates the Roselend lake from the smaller la Gittaz lake.

dès 1993 un programme de recherche sur les phénomènes physiques et chimiques associés aux tremblements de terre. L'instrumentation de la crête de Sur-Frêtes est poursuivie (Trique, 1999). Les premiers instruments de mesure sont installés dans le tunnel, à l'époque abandonné, qui avait été creusé par EDF dans les années 50 dans le massif du Méraillet, éperon rocheux sur lequel s'appuie le barrage de Roselend (Figure 1.9).

Le Laboratoire Naturel de Roselend trouve donc ses origines dans la recherche de signaux précurseurs de séismes, et rapidement dans la compréhension des phénomènes de transferts dans les milieux naturels. Le lac de barrage de Roselend constitue en effet une gigantesque presse qui appuie de façon cyclique sur le massif rocheux du Méraillet : les variations annuelles du niveau d'eau dans le lac reproduisent les mises sous contraintes lors de la phase pré-sismique, sans que le stade de rupture ne soit jamais atteint. Dans les années 1990, les mesures de potentiel électrique du sol, d'inclinométrie et d'activité en radon dans le tunnel révèlent l'existence d'anomalies importantes en relation avec les variations du niveau d'eau dans le lac (Trique *et al.*, 1999). Les mesures de potentiel électrique du sol sur la crête de Sur-Frêtes mettent également en évidence un écoulement d'eau dans la roche depuis le lac de la Gittaz vers le lac de Roselend, qui génère des

courants électriques (effet électrocinétique, Trique *et al.*, 2002).

Après cette première phase de recherches centrée autour de la géophysique, la station sur la crête de Sur-Frêtes est abandonnée et les mesures se concentrent autour du tunnel. Dans les années 2000, l'étude de la dynamique du radon est poursuivie (Perrier *et al.*, 2005; Richon *et al.*, 2005), et une étude hydrogéologique et géochimique complète est menée : origine, composition chimique, quantité et vitesse des eaux souterraines (Pili *et al.*, 2004; Patriarche *et al.*, 2007; Pili *et al.*, 2008a, 2012).

Depuis 2008, le projet de recherche ROSELEND-Gas (Research On Solicitation Effects in a Large-scale Experiment under Natural Dynamics with Gas, Pili *et al.*, 2008b) s'intéresse à la dynamique et la migration des gaz, fluides complémentaires de l'eau dans la zone non saturée, pour l'amélioration de la détection des essais nucléaires souterrains par le Tice. Ces études restent toujours pertinentes pour la compréhension des précurseurs de séismes, mais intéressent également la remédiation des sites pollués par des substances volatiles, et les fuites de gaz depuis les différents stockages souterrains (CO_2 , déchets radioactifs ou autres).

Dans cette section, le Laboratoire Naturel de Roselend est présenté avec ses différentes composantes et installations, le contexte géologique dans lequel il s'intègre, ainsi que les résultats principaux obtenus depuis 15 ans concernant la dynamique et la migration des fluides (eau et gaz) dans les roches.

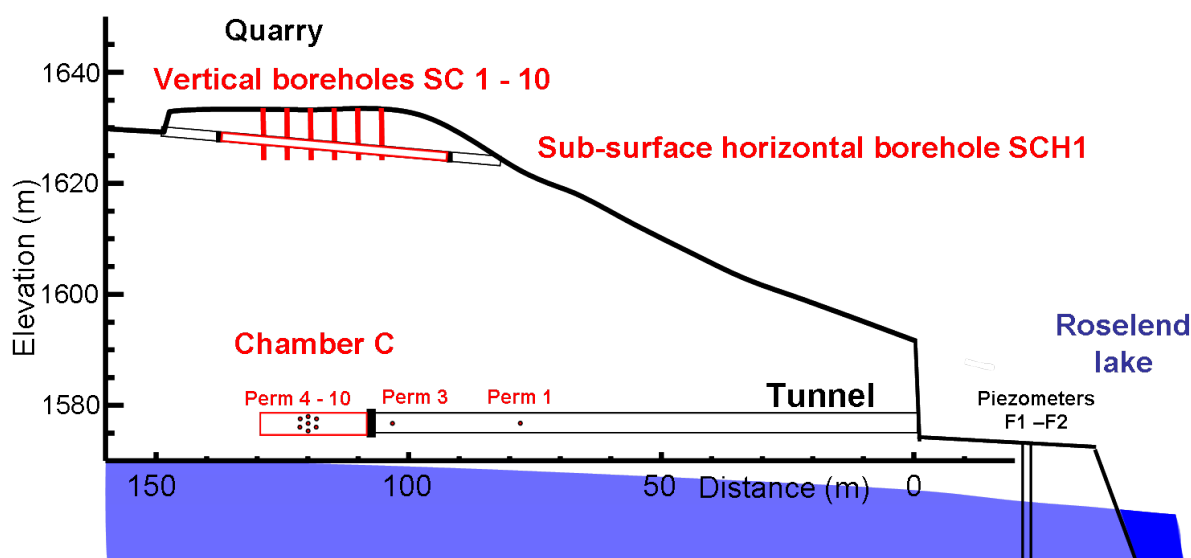


FIGURE 1.10 – Coupe verticale à travers le Laboratoire Naturel de Roselend selon l'axe du tunnel (N65). Les différents forages (SCH1, SC, Perm) réalisés dans le tunnel et dans la carrière sont représentés, ainsi que le mur étanche délimitant la chambre C. La topographie est représentée de manière schématique.

FIGURE 1.10 – Vertical cross-section of the Roselend Natural Laboratory along the tunnel axis (N65). The boreholes drilled in the tunnel and in the quarry (Perm, SC and SCH1) are represented, as well as the air-tight bulkhead that isolates the chamber. Surface topography is schematic.

1.3.1 Description des installations

Au cours du temps, de nombreuses installations ont équipé le Laboratoire Naturel de Roselend. Pour ce travail expérimental sur la migration des gaz, un important dispositif d'injection et d'observation des gaz a été développé. Comme le montre la Figure 1.10, le Laboratoire Naturel de Roselend s'organise entre le tunnel et une carrière abandonnée située 55 m au dessus. La carrière comporte près de vingt forages qui permettent de prélever et d'analyser les fluides dans les roches à différents profondeurs.

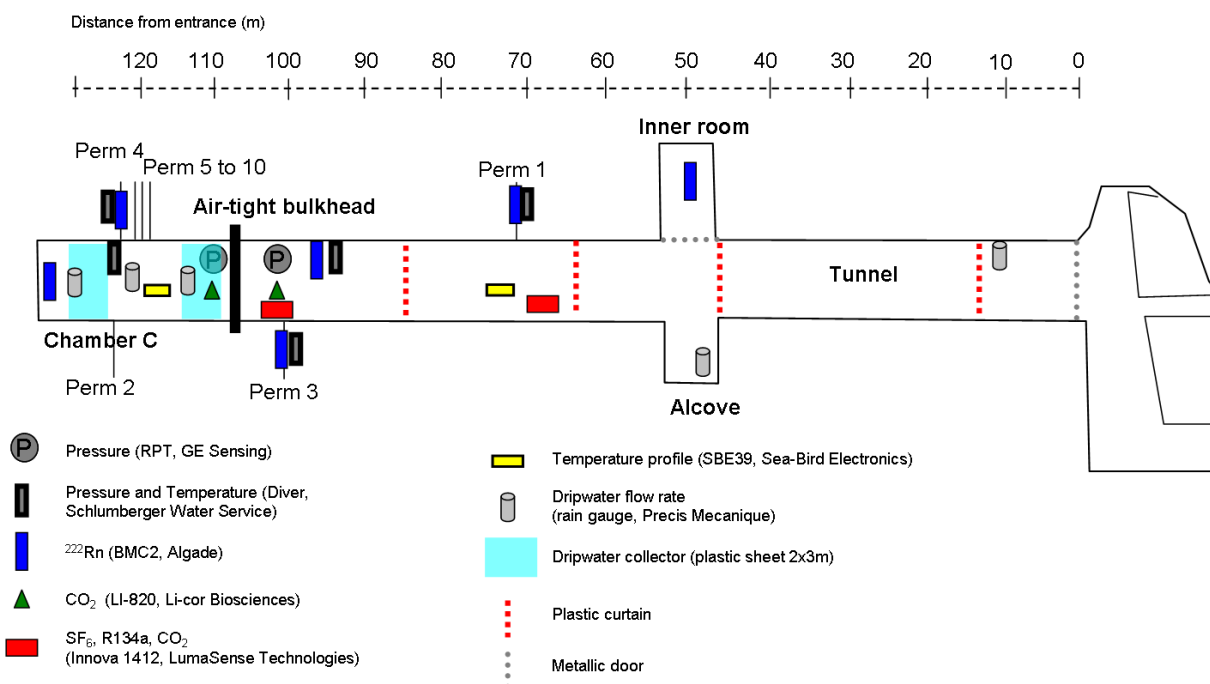


FIGURE 1.11 – Schéma du tunnel avec la position des rideaux de séparation, du mur étanche, de la inner room et de l'alcôve. Les positions des forages Perm sont indiquées. Les mesures effectuées en continu depuis 2009 dans les diverses parties du tunnel sont indiquées, avec les instruments utilisés. Deux bâches en plastique (rectangles bleus) sont installées au dessus de pluviomètres pour collecter l'eau qui percole au toit du tunnel.

FIGURE 1.11 – Diagram of the tunnel with locations of the isolation curtains, air-tight bulkhead, inner room and alcove, and boreholes Perm. The parameters that are continuously monitored along the tunnel since 2009 are indicated, with the instruments used. Two plastic sheets (blue rectangles) are installed above rain gauges to collect water dripping from the roof of the tunnel.

1.3.1.1 Autour du tunnel

Le tunnel mesure 128 m de long et environ 2,40 m de diamètre. Une pente d'environ 1 % permet l'écoulement de l'eau vers l'extérieur. Ce tunnel a été creusé à l'explosif entre 1952 et 1954, avant la construction du barrage de Roselend. Ce tunnel a d'abord servi à s'assurer de la qualité de la roche, qui allait ensuite être exploitée 55 m au-dessus, dans la carrière, pour fournir le granulat nécessaire à la fabrication du béton du barrage. Au milieu du tunnel (Figure 1.11), un local appelé « inner room », fermé

par une porte, a servi au stockage des explosifs utilisés pour l'exploitation de la carrière pendant la construction du barrage, entre 1955 et 1962. En cas d'explosion accidentelle, la géométrie du tunnel aurait permis d'amortir l'onde de choc dans l'alcôve (Figure 1.11) et dans les 2 branches latérales du tunnel.

Avec le début de l'instrumentation du tunnel, quatre rideaux plastiques ont été installés pour limiter la ventilation du tunnel par l'air extérieur. Ces rideaux délimitent 5 compartiments (Figure 1.11). La Figure 1.11 indique les différentes mesures de pression d'air, profils verticaux de température, activité en radon et concentrations en gaz qui sont effectuées en continu depuis 3 à 15 ans. Depuis une dizaine d'années, cinq pluviomètres mesurent en continu les débits d'eau au toit du tunnel, au niveau de zones fracturées ou non.

Un mur étanche aux gaz a été construit en 2010 à la cote 108 m (Figure 1.12), dans une zone peu fracturée et montrant des débits d'eau très faibles. Il isole une cavité appelée chambre C, de 20 m de long et d'environ 60 m³ de volume. Cette chambre isolée constitue un élément essentiel du dispositif expérimental mis en œuvre dans cette thèse. Afin d'assurer au maximum l'étanchéité de cette chambre, le mur a une épaisseur de 30 cm, et il est ancré de plus de 1 m dans la roche sur toute sa circonférence, ce qui correspond à la taille estimée de la zone endommagée autour du tunnel (voir Annexe A). Le mur est construit en béton armé vibré, avec une composition spéciale à faible perméabilité et faible retrait lors du séchage. Trois éléments sont insérés dans le mur (Figure 1.12) : une porte étanche pour entrer dans la chambre, et 2 platines pour faire passer les fluides, l'énergie et les signaux. L'étanchéité de ces éléments a été testée par les fournisseurs et est garantie jusqu'à une pression de 1,6 bar. L'étanchéité du contact entre ces éléments et le mur est assurée par un joint en caoutchouc et un revêtement de surface spécifique. L'étanchéité de ce mur a été validée à la fois lors des mises sous pressions de la chambre pour la mesure de perméabilité (Chapitre 2) et lors les injections de traceurs dans la chambre (Chapitre 4).

Entre 2009 et 2012, dix forages carottés sub-horizontaux d'environ 2 m de long ont été réalisés dans les parois du tunnel (Perm 1 à Perm 10). Les caractéristiques de ces forages sont récapitulées dans le Tableau 1.3. Le diamètre de tous ces forages est 86 mm. Ces forages ont permis l'étude de la zone endommagée autour du tunnel (voir Annexe A et en particulier les photographies des carottes de roche en Figure 7). Pour cette thèse, ces forages constituent un autre élément du dispositif expérimental utilisé pour l'étude de la zone non saturée.

En contrebas de la route qui longe le lac de Roselend, deux piézomètres de 150 m de profondeur, F1 et F2, ont été réalisés en 1998 (Figure 1.10). Ils sont équipés d'un tube métallique crépiné à la base. Le niveau piézométrique mesuré dans F1 indique qu'il est connecté avec le lac, dont il reflète les variations de niveau. Dans F2, le niveau piézométrique est systématiquement plusieurs mètres au dessus de celui dans F1, pourtant situé à seulement 10 m de distance, ce qui reflète l'hétérogénéité et la complexité des aquifères fracturés. F2 étant situé à proximité d'un ruisseau qui draine la carrière, le niveau piézométrique correspond à l'infiltration locale. Même s'il est difficile d'extrapoler les niveaux piézométriques mesurés dans F1 et F2 pour estimer la position de la nappe d'eau sous le tunnel, celui se situe clairement en zone non saturée, à environ 10 m au dessus du niveau piézométrique (Poirel, 2010).

La topographie étant localement très accidentée dans cette zone de montagne, il a

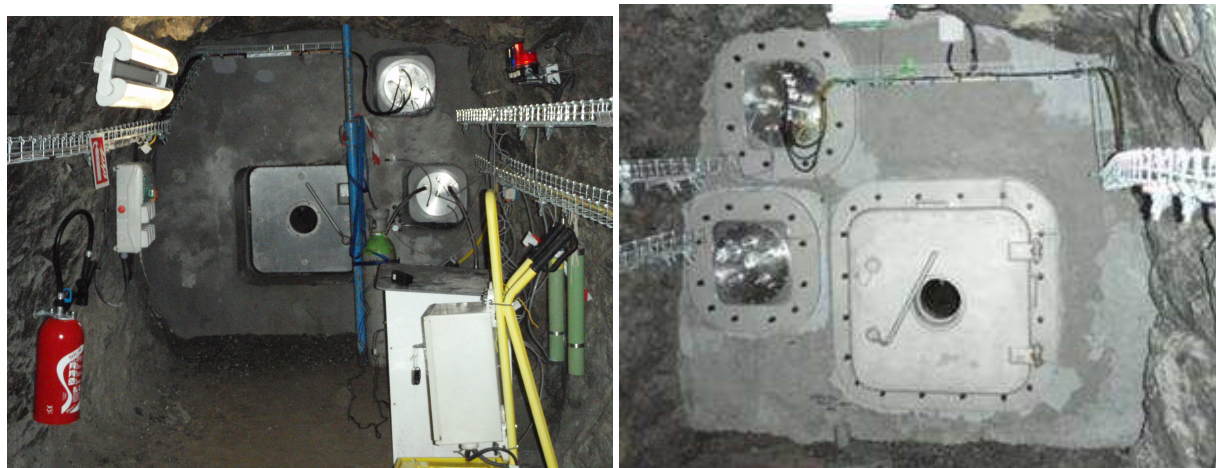


FIGURE 1.12 – Photos du mur étanche délimitant la chambre isolée C, 20 m avant le fond du tunnel. La photo de droite est prise depuis l'intérieur de la chambre. Une porte étanche permet de rentrer dans la chambre. Deux platines permettent le passage des connexions électriques (en haut) et des fluides (en bas).

FIGURE 1.12 – Pictures of the air-tight bulkhead that isolates the chamber C, 20 m before the dead-end of the tunnel. On the right, the bulkhead is seen from the chamber. Entrance inside the chamber is possible through an air-tight door. Electric (resp. fluid) connections are made through the upper (resp. lower) connecting plate.

fallu vérifier que le tunnel, et en particulier la chambre C, ne sont pas reliés à l'atmosphère par une distance plus courte que celle de 55 m mesurée verticalement. Les relevés topographiques réalisés par des géomètres l'ont confirmé.

1.3.1.2 Autour de la carrière

Afin de procéder à l'observation des gaz en surface (mesure de pression, prélèvement et analyse), une série d'ouvrages a été implantée dans la carrière à la verticale de la chambre C. La Figure 1.13 présente la localisation des différents forages et autres installations dans la carrière. L'organisation des différents forages dans le plan vertical est présentée dans la Figure 1.14. Un chalet abrite les instruments de mesure.

Dix forages carottés verticaux d'environ 10 m de profondeur ont été réalisés dans la carrière en 2011 (SC 1 à SC 10). Les caractéristiques de ces forages sont récapitulées dans le Tableau 1.4. Le diamètre de tous ces forages est 101 mm. Les 4 premiers mètres de ces forages sont tubés et cimentés, afin de limiter les connexions trop directes avec l'atmosphère à travers les premiers mètres très fracturés (Figure 1.15). Les 6 derniers mètres, dans la roche, sont laissés en trou nu, pour analyser les gaz dans la roche en sub-surface.

Trois piézomètres de 2 m de profondeur ont également été réalisés en 2011 (PZ1, PZ2 et PZ3). Ils sont équipés d'un tube PVC entièrement crépiné. Ils complètent 3 courts forages (T3, T3d et T4) de 1,5 m de profondeur réalisés en 2003, et équipés de tubes PVC pleins. Ces 6 forages permettent d'analyser les gaz dans les premiers mètres sous la surface (correspondant à la partie tubée des forages SC).

TABLEAU 1.3 – Caractéristiques des forages horizontaux Perm (diamètre 86 mm) réalisés dans les parois du tunnel. La valeur de la pente est négative (resp. positive) pour les forages inclinés vers le bas (resp. le haut).

TABLE 1.3 – *Characteristics of the boreholes Perm (86 mm diameter) drilled in the tunnel wall. The slope is negative (resp. positive) for boreholes dipping downward (resp. upward).*

Name	Length (cm)	Distance from entrance (m)	Wall	Slope (°)	Fracture density (m^{-1})*
Perm 1	160	77	N		
Perm 2	240	115	S		1
Perm 3	235	107	S	-8	
Perm 4	260	121	N	-10	0.8
Perm 5	224	120	N	-10	2.7
Perm 6	232	120	N	10	2.3
Perm 7	226	121	N	10	3
Perm 8	220	122	N	10	2.3
Perm 9	223	122	N	-10	0.8
Perm 10	220	121	N	-10	0.8

* Estimated from visual observation of cores and borehole inner walls.

TABLEAU 1.4 – Caractéristiques des forages verticaux SC (diamètre 101 mm) réalisés dans la carrière.

TABLE 1.4 – *Characteristics of the vertical boreholes SC (101 mm diameter) drilled in the quarry.*

Name	Length (m)	Fracture density (m^{-1})*
SC 1	10.3	1.1
SC 2	10.4	1.4
SC 3	9.6	0.8
SC 4	10.2	1.2
SC 5	10.2	1.9
SC 6	9.2	0.9
SC 7	9.6	1.9
SC 8	9.4	1.5
SC 9	9.8	1.9
SC 10	9.3	2.3

* Estimated from visual observation of cores and borehole inner walls.

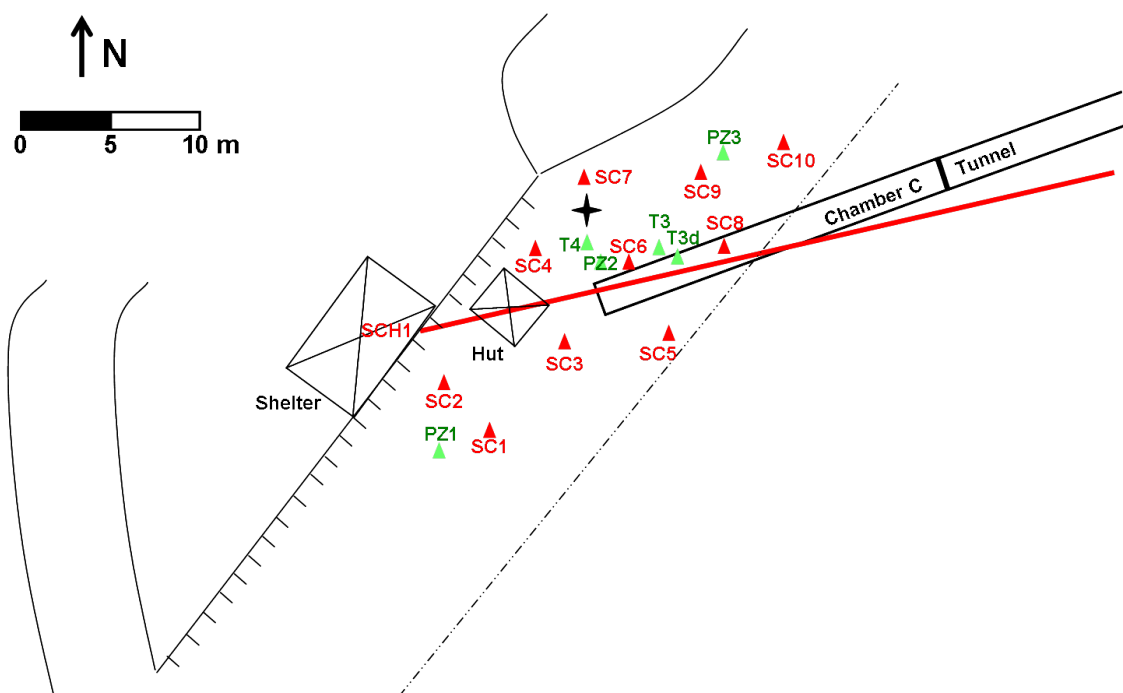


FIGURE 1.13 – Localisation des installations dans la carrière du Laboratoire Naturel de Roselend. Les forages verticaux SC 1 à 10 sont indiqués par les triangles rouges, les piézomètres PZ 1 à 3 et les forages courts T3, T3d et T4 par des triangles verts. Les traces en surface du tunnel et du mur délimitant la chambre C (traits noirs), ainsi que du forage sub-horizontale SCH1 (trait rouge) sont indiquées. La station météorologique est indiquée par une étoile. Les instruments pour le suivi des gaz dans les forages verticaux et sub-horizontale sont situés respectivement dans le chalet et la remise.

FIGURE 1.13 – Schematic map of the quarry at the Roselend Natural Laboratory. Vertical boreholes SC 1 to 10 are indicated by red triangles, piezometers PZ 1 to 3 and short boreholes T3, T3d and T4 by green triangles. Surface projections of the tunnel and the wall isolating chamber C (black lines), and of the sub-horizontal borehole SCH1 (red line) are indicated. The weather station is indicated by a star. Instruments for monitoring gases in the vertical and sub-horizontal boreholes are hosted in the chalet and the shelter, respectively.

Les forages SC, les piézomètres PZ et les forages courts T sont accessibles au niveau du sol via des regards en fonte. Ils sont tous connectés avec le chalet par des tubes en téflon passant dans des gaines enterrées. Ceci permet de prélever et d'analyser les fluides de ces différents forages depuis le chalet. En hiver, les forages sont en effet inaccessibles directement à cause de la neige. Ce dispositif protège également le système de mesure des passages, des animaux et du vandalisme.

Enfin, un forage carotté sub-horizontale de 56 m de long (nommé SCH1, Figures 1.10 et 1.13) a été réalisé en 2011. Ce forage a été réalisé au plus proche d'un plan vertical passant par l'axe du tunnel. Cette orientation est perpendiculaire à l'orientation principale des fractures (cf Figure 1.16). Ce forage a une pente de 5 degrés vers le lac, pour évacuer facilement l'eau qui s'infiltre depuis la surface après les précipitations et à la fonte du manteau neigeux. Un local, appelé Remise, a été construit autour de l'extrémité supérieure de ce forage afin d'y héberger les instruments de mesure. L'extrémité basse

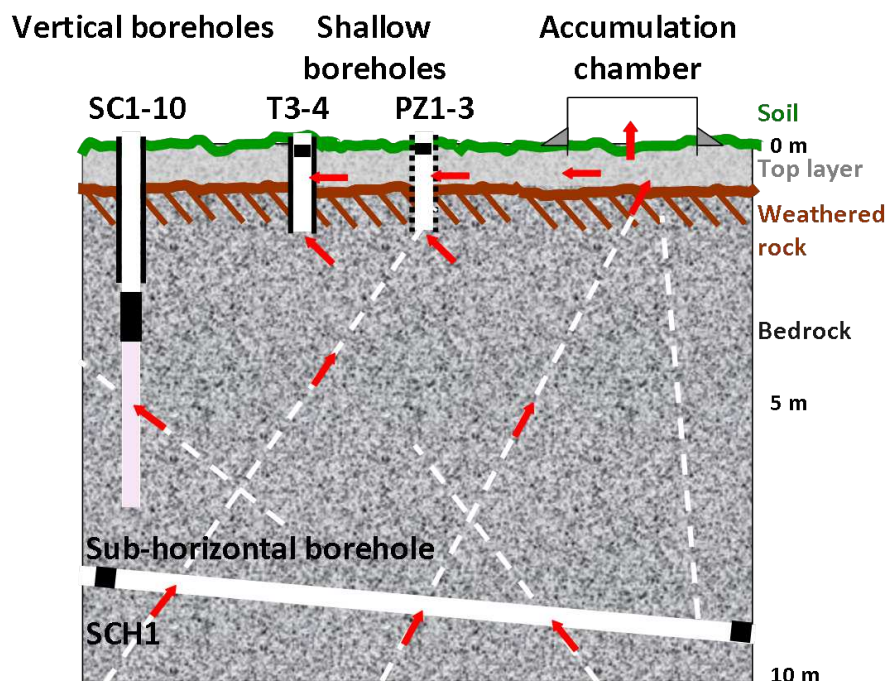


FIGURE 1.14 – Coupe schématique verticale des moyens d’observation des gaz dans les 10 premiers mètres de la zone non saturée. Sont représentés les différents forages et une chambre d’accumulation permettant d’analyser les gaz à différentes profondeurs et en provenance des différentes parties du système fractures-matrice. Les flèches rouges représentent la migration des gaz. Au dessus de la roche mère saine, on distingue une zone d’altération, un remblai et un sol peu développé (cf. texte pour plus de détails). D’après É. Pili (com. pers.).

FIGURE 1.14 – Schematic vertical cross-section of the tools to monitor gases in the 10 first meters of the unsaturated zone. The boreholes and an accumulation chamber are represented, that allow monitoring of gases at various depths and from the various parts of the fractures-matrix system. Red arrows represent gas migration. Above the unaltered bedrock, there is a weathered zone, a backfill top layer and a thin soil (see text for details). From E. Pili (pers. com.).

débouche dans la pente entre la carrière et la route, et est le plus souvent isolée par un obturateur gonflable. Ce forage permet l’analyse des gaz dans la roche entre 5 et 7 mètres de profondeur.

Une station météorologique a été installée dans la carrière fin 2010. On dispose ainsi des mesures continues des paramètres suivants : pression, température et humidité de l’air, température du sol, vitesse et direction du vent, hauteur de neige, précipitations (quantité, nature et vitesse des hydrométéores), ensoleillement, visibilité. Ces paramètres déterminent les forçages sur les fluides (eau et air), et doivent donc être connus.

Depuis 2005, une station GPS permanente est installée dans la carrière. Elle est gérée par l’Institut des Sciences de la Terre de Grenoble et fait partie du réseau RENAG (REseau National GPS permanent).

Une station sismique courte-période du réseau RéNaSS (Réseau National de Surveillance Sismique) et un accéléromètre sont également installés à 600 m du Laboratoire

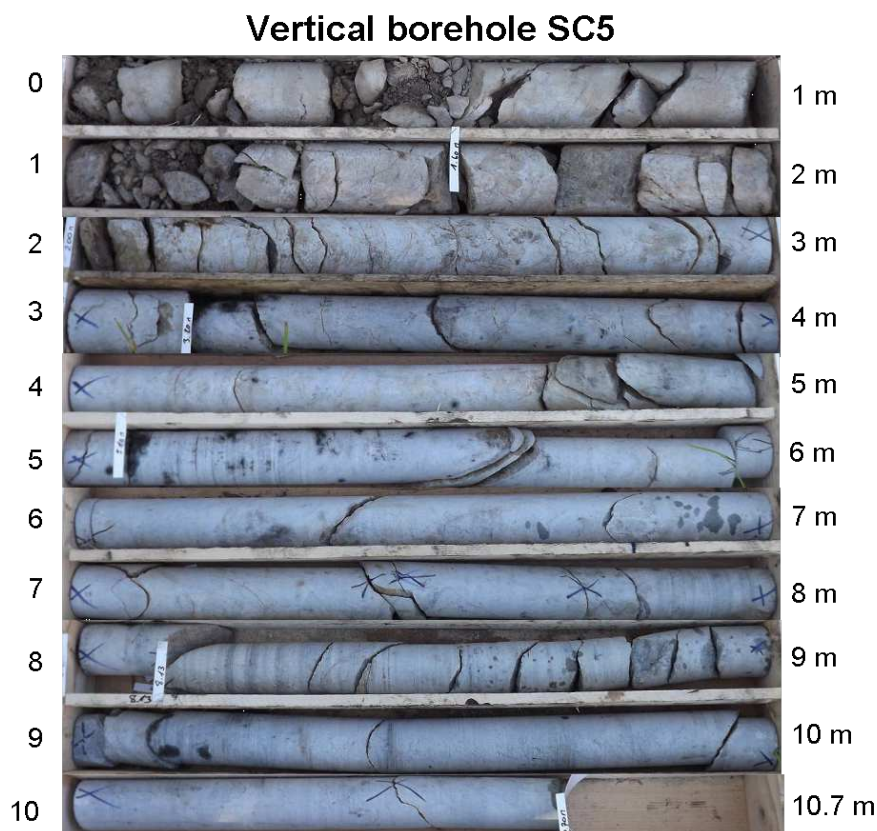


FIGURE 1.15 – Photographies des carottes de roche du forage vertical SC5, dans la carrière. La fracturation est intense dans les 2 premiers mètres.

FIGURE 1.15 – *Picture of the cores from vertical borehole SC5, in the quarry. The first two meters are highly fractured.*

Naturel de Roselend dans le sous-sol du bâtiment qui abritait le poste de contrôle du barrage de Roselend.

1.3.2 Contexte géologique, du régional au local

1.3.2.1 Roselend, au cœur des Alpes françaises

Le Laboratoire Naturel de Roselend se situe dans le Massif Cristallin Externe du Beaufortain, dans la continuité Sud du massif du Mont Blanc. Le tunnel et la carrière sont situés dans le massif du Mérailllet (Figure 1.9), qui est constitué de roches cristallines du Paléozoïque (600 à 300 Ma).

Au dessus des roches cristallines des Massifs Cristallins Externes, on trouve à l'Est la série des roches sédimentaires Mésozoïque et Cénozoïque, tout d'abord les grès et conglomérats du Carbonifère (310 Ma), témoins de l'érosion de la Chaîne Hercynienne. Puis on trouve des sédiments qui se sont déposés dans l'Océan Alpin : gypses et cargneules du Trias (220 Ma), schistes noirs du Lias (180 Ma), visibles à la crête de Sur-Frêtes, et alternances de barres calcaires et de marnes du Crétacé (140 Ma), au Nord du lac de Roselend. Encore plus à l'Est se trouve le front pennique, un grand chevauchement

qui sépare les Alpes externes des Alpes internes, ayant subi le métamorphisme alpin (Ceriani *et al.*, 2001).

1.3.2.2 Un massif de roches cristallines fracturées

1.3.2.2.1 Pétrologie et minéralogie Le massif du Méraillat est constitué de roches cristallines hercyniennes. L'étude pétrologique réalisée au Laboratoire Naturel de Roselend (Boullier, 2004) révèle une diversité de roches. Le tunnel traverse d'abord des micaschistes (cotes 0 à 80 m), puis un leucogranite (cotes 80 à 90 m) et enfin des gneiss (cotes 90 à 128 m). Ces roches sont essentiellement constituées de quartz, feldspath plagioclase, micas et chlorite.

Parmi les minéraux accessoires, on trouve des carbonates dont la répartition est assez hétérogène, en veines ou entre les grains des roches (Boullier, 2004), ainsi qu'un certain nombre de sulfures, dont la pyrite est le plus abondant. Certaines de ces pyrites sont des arsénopyrites, dont l'oxydation est à l'origine de la présence d'arsenic dans l'eau, comme mesuré dans certaines sources du Beaufortain (Pili *et al.*, 2012).

Le massif du Méraillat est caractérisé par une foliation hercynienne reprise par une schistosité alpine sub-verticale et par différentes générations de veines (Boullier, 2004). Ces veines, qui présentent des assemblages minéralogiques à quartz, calcite et/ou chlorite, indiquent l'importance des circulations de fluides.

1.3.2.2.2 Géochimie La teneur en radium-226 des roches du Laboratoire Naturel de Roselend, mesurée par spectrométrie gamma, est comprise entre 20 et 170 Bq/kg. A partir de la mesure de l'émanation de radon sur des échantillons de roche, une valeur de $1,9 \pm 0,3$ % est obtenue pour le coefficient d'émanation du radon (Richon *et al.*, 2005; Girault et Perrier, 2012). L'activité en radon à l'équilibre dans la porosité de la roche est estimée à plusieurs dizaines voire centaines de milliers de Bq.

Les flux d'exhalaison de radon mesurés par la méthode de la chambre d'accumulation sur la paroi du tunnel sont compris entre 1,4 et 9,3 mBq·m⁻²·s⁻¹ (Richon *et al.*, 2005). Dans cette étude, des flux similaires ont été mesurés dans les forages Perm, dans les parois du tunnel (Chapitre 3).

1.3.2.2.3 Fracturation L'étude de la déformation dans le massif du Méraillat, et plus particulièrement le relevé systématique de l'orientation des fractures recoupant le tunnel (Dezayes et Villemin, 2002), met en évidence deux grandes familles de fractures, perpendiculaires et toutes les deux à fort pendage, c'est-à-dire sub-verticales. Les données présentées en Figure 1.16 montrent une famille de fractures orientée N110 à fort pendage vers le Sud-Ouest, et une famille orientée N20 à fort pendage vers le Nord-Ouest. Même si on ne peut exclure un biais de sous-échantillonnage des fractures dans la direction du tunnel, il semble que le tunnel ait été creusé dans une direction où il y a très peu de fractures. Lors de la réalisation des forages dans la carrière, la configuration offrant la plus forte probabilité d'intercepter des fractures était ainsi celle d'un forage horizontal parallèle à la direction du tunnel. C'est la configuration choisie pour le forage SCH1. Les forages verticaux SC ont été réalisés en nombre beaucoup plus grand (10) de façon à échantillonner l'hétérogénéité du massif rocheux, en particulier sa fracturation.

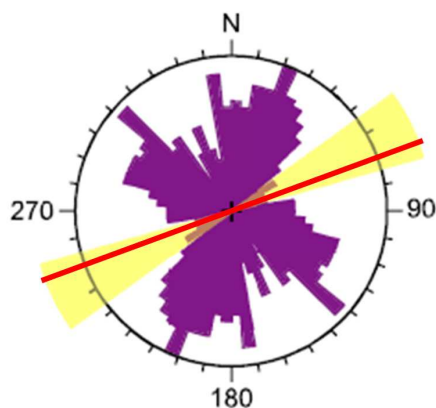


FIGURE 1.16 – Diagramme des directions de fracture dans le tunnel, au pas de 5° (violet). Le secteur jaune, centré sur la direction de l’axe du tunnel (N65) et du forage SCH1 (trait rouge), montre un faible nombre de fractures dans cette direction. Modifié d’après Dezayes et Villemin (2002).

FIGURE 1.16 – Diagram of fracture directions in the tunnel, with a 5° step (violet). The yellow zone, centered around the tunnel (N65) and borehole SCH1 axes, presents few fractures in this direction. Modified from Dezayes et Villemin (2002).

La Figure 1.17 indique les positions des 21 grandes fractures qui recoupent entièrement le tunnel. A partir des densités de fracture et des débits d’eau de percolation, on distingue 3 zones aux comportements différents (Figure 1.17) :

- entre 0 et 50 m, une forte densité de fracture (0,6-1 fracture/m) est associée à des débits d’eau modérés à forts, sous une faible couverture rocheuse.
- entre 50 et 100 m, une densité de fracture moyenne (0,45-0,85 fracture/m) et de faibles débit d’eau
- entre 100 et 128 m, la densité de fracture est faible (0,5-0,6 fracture/m) et les débits d’eau très forts, indiquant la présence d’un réseau de fractures percolant qui draine l’eau depuis la surface.

A partir des fractures relevées le long du tunnel, la modélisation numérique permet de reconstituer une représentation possible d’un réseau de fractures dans tout le massif rocheux entre le tunnel et la surface (Patriarche *et al.*, 2007). Des simulations d’écoulement d’eau dans ce réseau, en supposant une saturation quasi totale du massif lors de la fonte des neiges, reproduisent les débits d’eau mesurés le long du tunnel. Ces simulations montrent par ailleurs que la combinaison des grandes fractures et du réseau des petites fractures est nécessaire pour que le seuil de percolation soit atteint (Patriarche *et al.*, 2007).

1.3.2.3 La carrière, à l’interface entre la géosphère et l’atmosphère

La Figure 1.14 présente de manière schématique l’organisation des premiers mètres sous la surface de la carrière. La zone de travail est située sur un remblai, avec un sol très peu développé. Trois fosses pédologiques ont été réalisées dans la carrière, de profondeur maximale 100 cm, pour connaître la structure du sol et du sous-sol (S. Bureau et É. Pili, com. pers.). Au dessus des roches cristallines saines, 4 horizons se succèdent depuis la surface (Pili *et al.*, 2008a) :

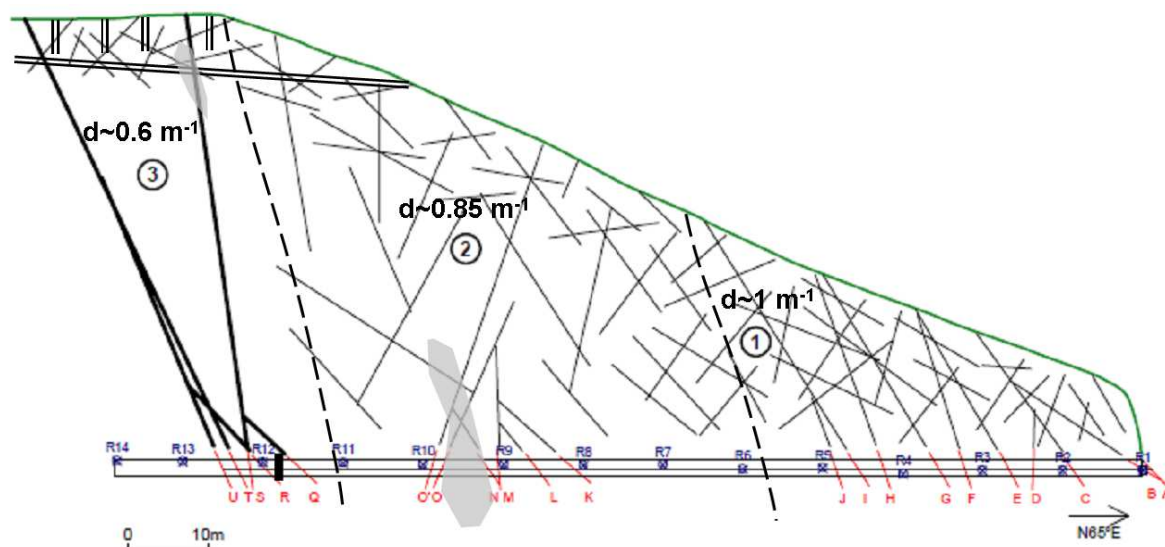


FIGURE 1.17 – Schéma de la fracturation du massif sus-jacent au tunnel, extrapolé à partir des traces de fractures relevées dans le tunnel. Les veines de quartz repérées dans le tunnel et dans le forage SCH1 sont indiquées en gris. Les trois zones indiquées sont présentées dans le texte. Modifié d'après Dezayes et Villemain (2002) et Patriarche *et al.* (2007).

FIGURE 1.17 – Diagram of the fracture network above the tunnel, extrapolated from fracture traces logged on the tunnel walls. Quartz veins, observed in the tunnel and borehole SCH1, are indicated in grey. The three zones of the rock are presented in the text. Modified from Dezayes et Villemain (2002) and Patriarche *et al.* (2007).

- un sol peu développé, d'une épaisseur de 5 à 15 cm, composé d'un mélange de terre, de blocs centimétriques et de nombreuses racines,
- un remblai, d'une épaisseur d'environ 25 à 50 cm, constitué de blocs décimétriques, avec un peu de terre et de racines,
- une zone d'altération de la roche mère, intensément fracturée, plus ou moins riche en matière organique et en argiles, d'une épaisseur comprise entre 5 et 50 cm.

Ces horizons sont également observés dans les carottes des forages verticaux SC (Figure 1.15). Les épaisseurs de sol et de remblai varient d'un endroit à l'autre, et sont même parfois quasiment nulles. Il existe donc une hétérogénéité spatiale importante. Les premiers mètres sous la surface constituent une zone hétérogène et soumise aux multiples forçages atmosphériques.

Grâce aux forages SC, SCH1, PZ et T, on peut prélever et analyser les fluides à différentes profondeurs entre 0 et 10 m (Figure 1.14), pour étudier précisément leur comportement dans ces quelques mètres. Des chambres d'accumulation, posées à la surface du sol (Figure 1.14), permettent de mesurer les flux de gaz émis par le sol, qui représentent le terme source pour l'atmosphère.

1.3.3 Dynamique naturelle

Le Laboratoire Naturel de Roselend est un cadre privilégié pour l'étude des transferts d'eau et de gaz dans les milieux naturels, en réponse aux forçages extérieurs, naturels ou anthropiques. Les forçages naturels y sont en effet variés et de fortes intensités, avec en particulier des précipitations importantes sous forme de pluie et de neige, une grande amplitude des variations du niveau du lac et de la position de la nappe d'eau souterraine, ou encore des fluctuations journalière à annuelle de la pression atmosphérique pouvant être fortes. Les mesures réalisées au Laboratoire Naturel de Roselend ont ainsi toujours montré une forte dynamique. Le suivi en continu de plusieurs paramètres pendant de longues périodes aide à comprendre le rôle des différents forçages naturels sur la dynamique observée.

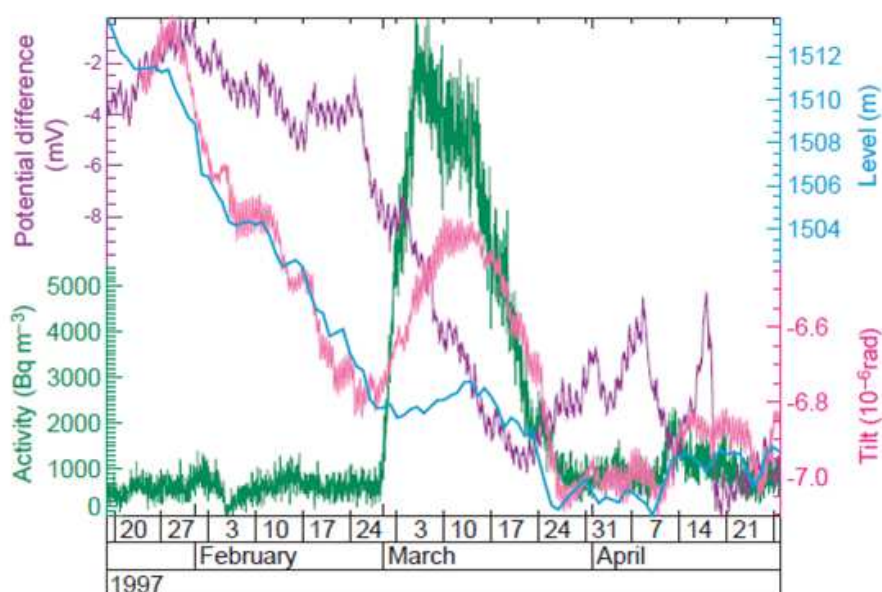


FIGURE 1.18 – Variations du niveau d'eau dans le lac de Roselend (bleu), inclinaison du massif du Mérailliet (rose), activité en radon dans le tunnel (vert) et potentiel électrique du sol mesuré sur la crête du Sur-Frêtes (violet), lors d'une anomalie en radon. D'après Trique *et al.* (1999).

FIGURE 1.18 – Variations of the Roselend lake level (blue), tilt of the Mérailliet massif (pink), radon activity in the tunnel (green) and electric potential in soil measured at the Sur-Frêtes ridge (violet), during a radon anomaly. From Trique *et al.* (1999).

1.3.3.1 Anomalies en radon dans le tunnel

Dès 1995, les premières mesures d'activité en radon-222 réalisées dans le tunnel révèlent une très forte dynamique. Comme le montre la Figure 1.18, on enregistre des augmentations rapides et transitoires de l'activité en radon, avec des pics allant jusqu'à $80\,000\text{ Bq}\cdot\text{m}^{-3}$, alors que l'activité hors anomalie est en moyenne de 600 à $1200\text{ Bq}\cdot\text{m}^{-3}$ (Richon *et al.*, 2005, 2009). Les premières interprétations faites par Trique *et al.* (1999) mettent en relation ces anomalies en radon-222 et les variations du niveau du lac de barrage de Roselend, dont l'amplitude maximale annuelle atteint 70 m (Figure 1.19). Comme le montre la Figure 1.18, on enregistre simultanément une augmentation rapide

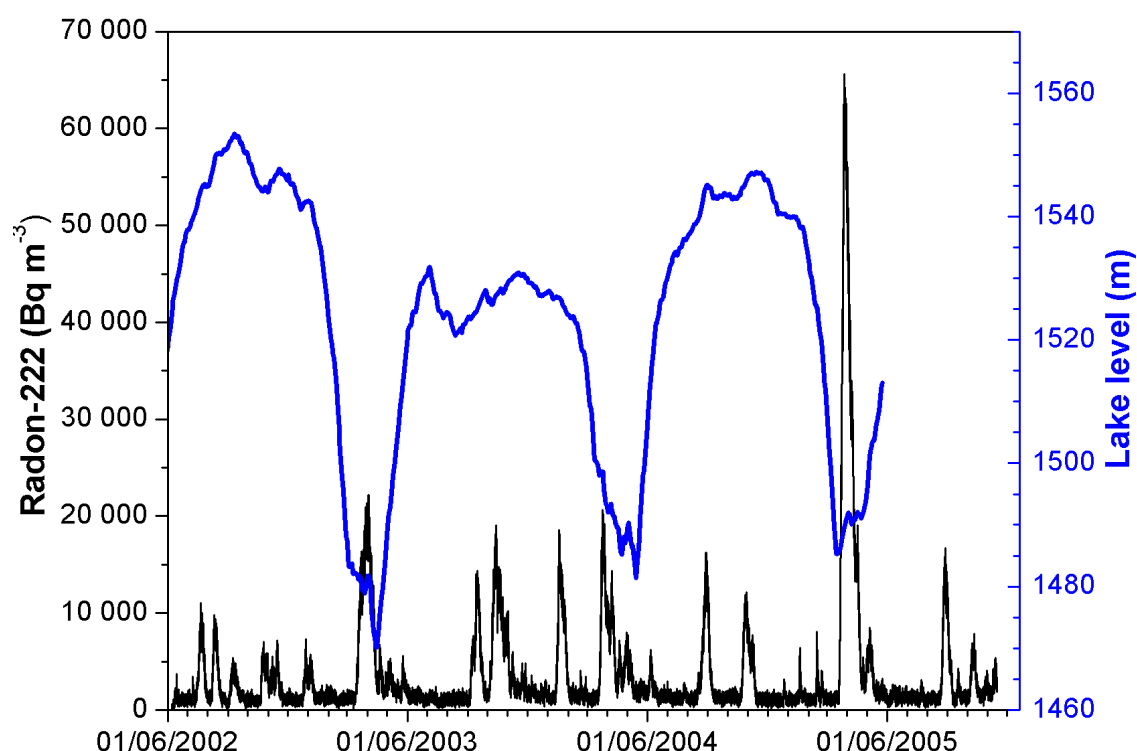


FIGURE 1.19 – Niveau d’eau dans le lac de Roselend (bleu, données EDF) et activité en radon mesurée dans le tunnel entre 2002 et 2005 (noir, données Patrick Richon).

FIGURE 1.19 – *Roselend lake level (blue, data from EDF) and radon activity measured in the tunnel from 2002 to 2005 (black, data from Patrick Richon).*

et forte de l’activité en radon, une inclinaison des roches du massif et une variation du potentiel électrique mesuré dans le sol. Alors que l’inclinaison des roches est directement corrélée au niveau du lac avant l’anomalie, traduisant une déformation élastique, cette relation est perdue pendant l’anomalie en radon, avec l’apparition d’une déformation plastique (Figure 1.18).

Ces anomalies en radon sont également corrélées avec la dérivée seconde du niveau d’eau dans le lac (Trique *et al.*, 1999), c’est-à-dire l’accélération du niveau d’eau, qui correspond à une force. Les mesures de déplacement par le GPS montrent que le massif du Mérailliet bouge horizontalement de 4 cm vers le lac chaque année, sous l’effet du remplissage du lac. Le modèle proposé pour expliquer ces anomalies est un couplage mécanique : lorsque le niveau d’eau dans le lac augmente, la masse d’eau créerait des contraintes dans le massif du Mérailliet sur lequel elle appuie. Ces contraintes mécaniques ouvriraient des fractures ou augmenteraient la pression de pore. Une augmentation de la perméabilité et/ou de la vitesse d’écoulement seraient induites, ce qui apporterait dans le tunnel un flux plus important de radon. La sensibilité des écoulements de fluides et de l’activité en radon aux contraintes mécaniques en font ainsi de bons candidats pour des précurseurs de séismes.

De telles anomalies de l’activité en radon se répètent 5 à 7 fois par an dans le tunnel (Figure 1.19), avec une anomalie plus importante entre mars et avril, lors de la fonte des neiges, au moment où le lac est à son plus bas niveau et où il se remplit rapidement

(Figure 1.18).

Les mesures de concentration en CO_2 réalisées par la suite dans le tunnel montrent un comportement semblable à celui du radon, avec des augmentations transitoires de concentration jusqu'à 2 000 ppm se rajoutant à une ligne de base d'environ 600 ppm (Richon *et al.*, 2009). Ces anomalies de concentrations en gaz dans l'atmosphère du tunnel s'accompagnent d'anomalies géochimiques en ions dissous (Pili *et al.*, 2004), avec une augmentation du DIC et une diminution du pH de l'eau de percolation (É. Pili, com. pers.), en lien avec l'augmentation du CO_2 dans l'air du tunnel. Ces résultats permettent de préciser le mode de génération des anomalies, qui seraient issues d'une augmentation transitoire de la connectivité entre la matrice et les fractures (Pili *et al.*, 2004).

Après plus de 10 ans de mesures au Laboratoire Naturel de Roselend, la compréhension de la dynamique du radon enregistrée dans le tunnel s'est approfondie, avec en particulier le développement de méthodes de traitement du signal et la mise en évidence de la modulation barométrique des concentrations en CO_2 et radon dans le tunnel (Richon *et al.*, 2009).

Récemment, il a été montré que le forçage hydrogéologique a un rôle plus important que le forçage mécanique sur les mouvements de fluides dans le massif rocheux, à l'origine des anomalies en radon (Richon, 2011). Les augmentations du niveau de la nappe, en réponse à celles du lac, entraîneraient un déplacement de l'air chargé en radon contenu dans les fractures, par effet piston (Richon, 2011). Ce mécanisme sera repris et discuté plus en détails dans le Chapitre 3.

1.3.3.2 Quantité et composition des eaux d'infiltration

Dans les années 2000, les recherches au Laboratoire Naturel de Roselend se sont intéressées à l'eau qui s'infiltre et percole depuis la surface jusqu'à la nappe, à travers plus de 60 m de zone non saturée : quantité, temps de parcours et interactions avec la roche.

TABLEAU 1.5 – Bilan hydrique réalisé au Laboratoire Naturel de Roselend sur la période 2002-2005. L'évapotranspiration est calculée à partir des paramètres météorologiques. L'infiltration est obtenue en négligeant le ruissellement. D'après D. Patriarche, com. pers., et Poirel (2010).

TABLE 1.5 – Water budget obtained for the Roselend Natural Laboratory during the period 2002-2005. Evapotranspiration is calculated from meteorological parameters. Infiltration is then obtained, and runoff is supposed to be negligible. From D. Patriarche, pers. com., and Poirel (2010).

		Full year	Winter	Summer
Precipitation	P	1500 mm	1000 mm (snow)	500 mm (rain)
Evapotranspiration	E	350 mm	50 mm	300 mm
Infiltration *	I	1150 mm	950 mm	200 mm

* runoff is neglected.

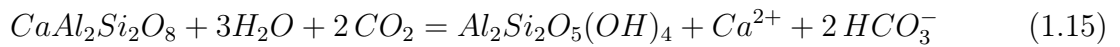
D'après le bilan hydrique réalisé de 2002 à 2005 au Laboratoire Naturel de Roselend, les précipitations moyennes sont de 1 500 mm d'eau par an, dont 1 000 mm l'hiver, sous forme de neige. Dans la zone sub-horizontale de la carrière, au dessus du tunnel et de la chambre, le ruissellement peut être négligé, et on peut calculer la seule évapotranspiration à partir de paramètres météorologiques (formules de Thornthwaite et de Penman). On trouve ainsi que 80 % des précipitations s'infiltrent dans la roche (Tableau 1.5). Les mouvements verticaux d'eau en zone non saturée sont donc importants, et on peut s'attendre à des effets sur les mouvements d'air. Des périodes de sécheresse sont également observées, pendant lesquelles l'infiltration d'eau est quasiment nulle, comme en été 2003, mais également en hiver, où l'eau est alors stockée en surface sous forme de neige (Pili *et al.*, 2008a, 2012).

Dans le sol et au contact de la roche, les eaux d'infiltration, d'origine météorique, s'enrichissent en ions dissous. La composition des eaux de percolation dans le tunnel est dominée par les ions HCO_3^- et Ca^{2+} ainsi que Mg^{2+} dans une moindre mesure (Pili *et al.*, 2004). On mesure également des ions SO_4^{2-} en quantités assez importantes, qui sont issus de l'oxydation de la pyrite.

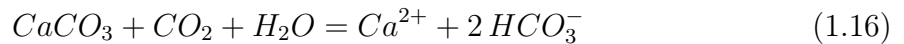
1.3.3.3 Cycle du carbone

Les chaînes de montagnes sont à l'origine de flux de carbone importants, qui doivent être pris en compte dans le cycle du carbone à l'échelle du globe. Ces montagnes sont majoritairement constituées de roches silicatées, dont l'altération par l'acide carbonique est un puits de CO_2 , en particulier dans les chaînes de montagnes récentes (Gaillardet et Galy, 2008). Mais les roches silicatées contiennent aussi jusqu'à 10 % de carbonates, dont l'altération est une source de CO_2 . Afin d'établir le bilan en CO_2 du massif rocheux dans lequel se trouve le Laboratoire Naturel de Roselend, une identification et une quantification des différents flux d'altération a été réalisée par Dellinger (2009) et Pili *et al.* (2009).

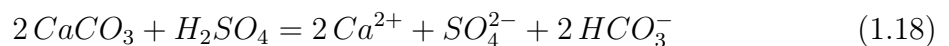
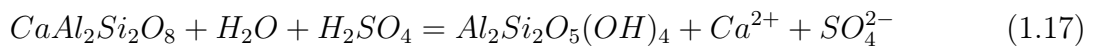
L'altération des silicates (par exemple les feldspaths) par l'acide carbonique (Équation 1.15) est un puits de CO_2 selon la réaction suivante :



Les roches du Laboratoire Naturel de Roselend contiennent entre 1 et 10 % de carbonates (Dellinger, 2009). L'altération des carbonates par l'acide carbonique (Équation 1.16) ne modifie pas la teneur en CO_2 de l'atmosphère, car le CO_2 reste à l'état dissous :



Le CO_2 n'est pas la seule source d'acidité à l'origine de l'altération. L'acide sulfurique libéré par l'oxydation des sulfures comme la pyrite participe également à l'altération des roches. La réaction d'altération sulfurique des silicates (Équation 1.17) est neutre vis-à-vis du CO_2 , alors que l'altération sulfurique des carbonates (Équation 1.18) est une source de CO_2 :



A partir des analyses de la composition chimique de l'eau qui percole au toit du tunnel, un bilan de masse selon Galy et France-Lanord (1999) a permis à Dellinger (2009) de conclure que la dissolution des carbonates est la source d'altération dominante à l'origine des ions dans l'eau d'infiltration.

TABLEAU 1.6 – Compositions isotopiques du carbone inorganique dissous (DIC) dans l'eau de percolation et du carbone de la calcite des stalactites (CaCO_3), et proportions respectives des altérations sulfurique et carbonique dans les gneiss du Laboratoire Naturel de Roselend. Les gammes indiquées correspondent aux valeurs minimales et maximales mesurées. D'après Dellinger (2009) et Pili *et al.* (2009).

TABLE 1.6 – *Carbon isotope compositions of dissolved inorganic carbon (DIC) in infiltration water and of calcite from stalactites (CaCO_3), and proportions of sulfuric and carbonic weathering in gneisses at the Roselend Natural Laboratory. The indicated ranges correspond to the minimum and maximum measured values. From Dellinger (2009) and Pili et al. (2009).*

	$\delta^{13}\text{C}_{\text{DIC}}$ (‰ PDB)	$\delta^{13}\text{C}_{\text{CaCO}_3}$ (‰ PDB)	Sulfuric weathering of carbonates (%)	Carbonic weathering of carbonates (%)	Carbonic weathering of silicates (%)
Matrix flow	-10.2 / -9.9	-5.7 / -4.5	49 / 66	21 / 41	9 / 13
Fractures flow	-15.4 / -12.3	-9.1 / -7.0	21 / 26	66 / 72	7 / 8
Runoff	-14.8	-	16 / 20	63 / 79	10 / 13

Les proportions relatives de l'altération des carbonates par l'acide carbonique et l'acide sulfurique peuvent être déterminées à l'aide de la composition isotopique du carbone inorganique dissous (DIC). Dans les eaux du Laboratoire Naturel de Roselend, le DIC est essentiellement sous forme HCO_3^- . Dans le sol, la respiration des racines et des micro-organismes libère de grandes quantités de CO_2 , qui se dissout en partie dans l'eau qui s'infiltré. Dellinger (2009) mesure ainsi une composition isotopique $\delta^{13}\text{C}_{\text{CO}_2}$ du CO_2 du sol entre -20 et -26 ‰ V-PDB, typique des végétations de type C3 (Lai *et al.*, 2003). Lors de son trajet dans la zone non saturée, l'eau d'infiltration se charge encore en CO_2 par dissolution de la calcite par l'acide sulfurique (Équation 1.18) et par l'acide carbonique (Équation 1.16). Le CO_2 issu de l'altération sulfurique (Équation 1.18) a la même composition isotopique que la calcite des roches, soit $\delta^{13}\text{C}_{\text{sulf}} = -9,2 \pm 0,5$ ‰ (Dellinger, 2009). Dans l'altération carbonique (Équation 1.16), le CO_2 est issu des contributions égales de deux réservoirs, la calcite et l'acide carbonique issu du sol. Sa composition isotopique est la moyenne de celles de ces deux réservoirs, soit $\delta^{13}\text{C}_{\text{carb}} = -16,5 \pm 1,5$ ‰. La pression partielle en CO_2 de l'eau de percolation est acquise dans le sol et est supérieure à 1 % de CO_2 . Lorsque cette eau arrive dans le tunnel, la pression partielle de CO_2 y est d'environ 800 ppm, et le CO_2 dégaze. Ce dégazage s'accompagne de la précipitation de calcite, selon la réaction inverse de l'Équation 1.16. De petites stalactites de carbonate de calcium sont ainsi observées au toit du tunnel.

Le Tableau 1.6 récapitule les compositions isotopiques du DIC des eaux de percolation et de la calcite des stalactites précipitées au toit du tunnel, dans les zones de fractures et dans les zones non fracturées, correspondant à la matrice. Les proportions relatives des altérations carbonique et sulfurique dans les fractures et dans la matrice estimées à partir de ces données sont également présentées dans le Tableau 1.6. Dans la matrice, le CO_2 dissous est rapidement consommé, et la source d'acidité principale

est l'acide sulfurique. Dans les fractures, c'est l'acidité carbonique qui domine, car le temps de résidence de l'eau et l'interaction eau-roche sont réduits. Les fractures sont connectées avec la surface et drainent donc plus facilement le CO_2 du sol.

Le bilan des flux de carbone entre la surface et le tunnel montre que l'altération du massif rocheux par les eaux souterraines est une source nette de carbone à l'atmosphère, avec un flux de carbone d'environ $10^5 \text{ molC}\cdot\text{km}^{-2}\cdot\text{an}^{-1}$.

1.3.4 Détermination des paramètres d'écoulement des fluides

1.3.4.1 Conductivité hydraulique verticale

En 2003, une expérience de traçage hydrogéologique a été réalisée entre la carrière et le tunnel (Pili *et al.*, 2008a). Environ 500 m^3 d'eau contenant $550 \text{ mmol}\cdot\text{L}^{-1}$ de NaCl ont été déversés dans la carrière sur une zone de quelques dizaines de m^2 , à l'endroit où se situe actuellement le mât météorologique (Figure 1.13), c'est-à-dire presque à la verticale de l'extrémité du tunnel. Les courbes de percée en ions dissous ont été mesurées au fond du tunnel, dans une zone fracturée avec un flux d'eau élevé, et dans une zone non fracturée avec un faible débit d'eau. L'expérience peut se résumer à un transport vertical 1D de solutés dans un milieu totalement saturé en eau. La Figure 1.20 présente les courbes de percée mesurées, et les résultats du modèle analytique utilisé pour reproduire les données. Les premières arrivées de Na et Cl sont mesurées au niveau de la zone fracturée seulement 1 jour après le déversement de l'eau marquée en surface, et après 11 jours au niveau de la zone non fracturée. Il existe donc une connexion rapide entre la surface et le fond du tunnel, via une ou plusieurs fractures. La dispersion observée dans les courbes de percée reflète par ailleurs l'hétérogénéité de la perméabilité et de la saturation du milieu. Les simulations numériques d'écoulement d'eau dans le réseau de fractures en conditions saturées donnent des temps de migration en accord avec les premières arrivées des traceurs mesurées dans la zone fracturée (Pili *et al.*, 2008a).

Le temps de trajet moyen entre la surface et le tunnel est estimé entre 20 et 100 jours dans les fractures, et entre 200 et 300 jours dans la matrice (Pili *et al.*, 2008a).

Comme le montrent les courbes de percée mesurées pour différents cations non utilisés comme traceurs, les concentrations élevées en Na entraînent un échange cationique, et une libération de Ca, Mg et K. Cet échange a lieu essentiellement au niveau des minéraux argileux qui sont présents dans le sol. Dix ans après le traçage, les concentrations en chlore restent élevées dans la matrice, ce qui indique des temps de renouvellement longs pour l'eau matricielle en zone non saturée.

Ces résultats illustrent l'importance de la double porosité : le réseau des fractures et la matrice (incluant probablement les petites fractures) constituent deux milieux, avec des propriétés de transport distinctes, mais en interactions constantes. A un transport rapide dans les fractures est associé un transport plus lent dans la matrice, et un échange lent des ions entre les fractures et la matrice, par advection ou par diffusion. Des modèles à double perméabilité devront à terme être utilisés pour approfondir la compréhension de l'écoulement et du transport à l'échelle du massif et pour les temps longs.

Des simulations d'écoulement d'eau dans le réseau de fractures reconstruit numéri-

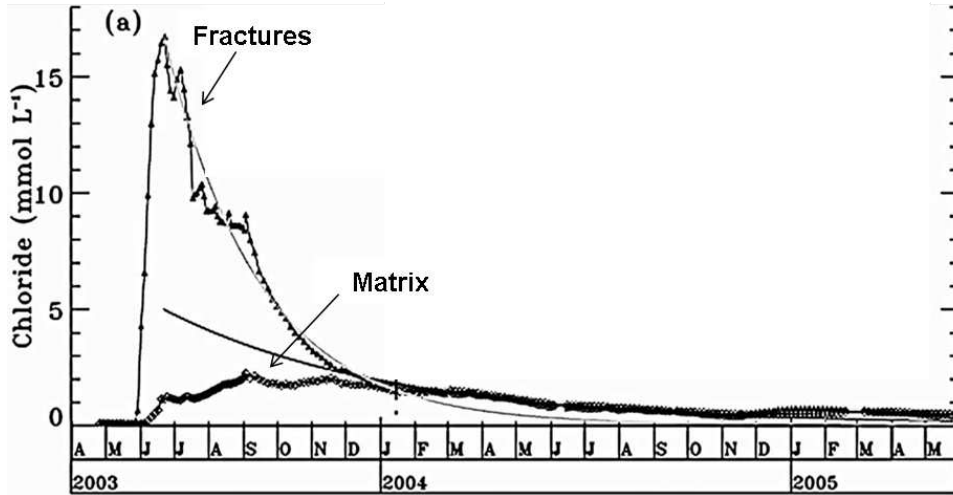


FIGURE 1.20 – Courbes de percée de Cl mesurées dans les eaux de percolation du tunnel après le déversement d’une solution de NaCl dans la carrière. La percée du traceur est mesurée dans une zone fracturée et dans une zone non fracturée (matrice). Les données de percée sont reproduites à l’aide de modèles de boîte avec un temps de résidence de 85 jours dans la zone fracturée, et de 200 jours dans la matrice. Modifié d’après Pili *et al.* (2008a).

FIGURE 1.20 – Breakthrough curves of Cl measured in water dripping in the tunnel after spilling a NaCl solution in the quarry. Tracer breakthrough is measured in both a fractured and non fractured (matrix) zones. Breakthrough data are reproduced using box models, with a residence time of 85 days in the fractured zone, and 200 days in the matrix. Modified from Pili *et al.* (2008a).

quement permettent de déterminer la conductivité hydraulique verticale et la porosité du massif rocheux. En supposant une ouverture moyenne des fractures de 0,1 mm, la perméabilité verticale calculée par Patriarche *et al.* (2007) pour la zone au fond du tunnel (108-128 m, Figure 1.17) est de $3,0 \cdot 10^{-13} \text{ m}^2$. La porosité calculée pour le réseau de fractures est de 0,33 % (Pili *et al.*, 2008a).

Des pompages d’essai à débit constant ont été réalisés dans les piézomètres F1 et F2. Ils permettent de déterminer que la transmissivité hydraulique de l’aquifère est de l’ordre de $2,8 \cdot 10^{-6}$ à $9,9 \cdot 10^{-6} \text{ m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$ (Poirel, 2010). L’équation 1.19 relie la perméabilité intrinsèque k en m^2 , la conductivité hydraulique K en $\text{m} \cdot \text{s}^{-1}$ et la transmissivité hydraulique T en $\text{m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$:

$$K = \frac{T}{e} = \frac{\rho_\ell \cdot g}{\mu_\ell} k \quad (1.19)$$

où e est l’épaisseur de l’aquifère (135 m dans F1 lors du pompage d’essai), ρ_ℓ la masse volumique de l’eau en $\text{kg} \cdot \text{m}^{-3}$, g l’accélération de la pesanteur en $\text{m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$ et μ_ℓ la viscosité dynamique de l’eau. La perméabilité obtenue d’après les pompages d’essai est ainsi de l’ordre de $0,3 \cdot 10^{-14}$ à $1 \cdot 10^{-14} \text{ m}^2$ (Pili *et al.*, 2008a; Poirel, 2010), un ordre de grandeur inférieure à la valeur obtenue par Patriarche *et al.* (2007). Cette différence sera expliquée grâce aux résultats obtenus au Chapitre 2.

1.3.4.2 Ventilation du tunnel

Malgré la présence de la porte d'entrée métallique et des 4 rideaux en plastique le long du tunnel (Figure 1.11), des échanges ont lieu entre l'air du tunnel et l'atmosphère extérieure, essentiellement sous l'effet des gradients de température et des fluctuations de la pression atmosphérique (Richon *et al.*, 2005). Les activités en radon mesurées à différents points dans le tunnel montrent une organisation spatiale, avec une diminution de l'activité en radon depuis le fond du tunnel vers l'entrée (Richon *et al.*, 2005), ce qui illustre l'existence d'une ventilation. Cette ventilation naturelle est quantifiée par le temps caractéristique du renouvellement de l'air du tunnel, la constante de ventilation λ_V (en s^{-1}).

A partir du flux de radon exhalé par les murs du tunnel Φ et de la constante de ventilation du tunnel λ_V , un bilan de matière est proposé par Perrier *et al.* (2005) pour calculer l'évolution théorique de l'activité en radon dans le tunnel :

$$\frac{dC}{dt} = \frac{S}{V}\Phi - \lambda C - \lambda_V(C - C_{ext}) \quad (1.20)$$

où C est l'activité en radon dans le tunnel en $Bq \cdot m^{-3}$, S la surface des murs du tunnel qui produisent du radon ($1250 m^2$), V le volume du tunnel ($496 m^3$) et $\lambda = 2,1 \cdot 10^{-6} s^{-1}$ la constante de désintégration du radon. L'activité en radon moyenne dans l'atmosphère extérieure C_{ext} est négligeable devant les activité moyennes mesurées dans le tunnel. La solution de l'Équation 1.20 est alors :

$$C(t) = (C_0 - C_\infty) e^{-(\lambda + \lambda_V)t} + C_\infty \quad \text{où} \quad C_\infty = \Phi \frac{S}{V} \frac{1}{\lambda + \lambda_V} \quad (1.21)$$

C_∞ correspond à la valeur d'équilibre, mesurée dans le tunnel en dehors des anomalies. A partir des valeurs mesurées de $C_\infty = 883 Bq \cdot m^{-3}$ et $\Phi = 3,7 \pm 1,0 \cdot 10^{-3} Bq \cdot m^{-2} \cdot s^{-1}$, on en déduit que le taux de ventilation du tunnel vaut $\lambda_V = 8 \pm 2 \cdot 10^{-6} s^{-1}$ (Richon *et al.*, 2005), soit un temps caractéristique du renouvellement de l'air du tunnel de 39 h. La décroissance de la concentration en CO_2 suite aux présences humaines (respiration) dans le tunnel permet de la même manière de déterminer un temps de renouvellement de l'air du même ordre.

En 2009, une mesure directe du taux de ventilation du tunnel a été réalisée en collaboration avec l'IRSN. Du SF_6 a été injecté continûment le long du tunnel, puis la baisse des concentrations en SF_6 a été mesurée pendant une semaine en différents points du tunnel. Un modèle de ventilation a permis d'obtenir un taux de ventilation de $8,14 \pm 1,33 \cdot 10^{-6} s^{-1}$ (Guerra, 2009), tout à fait en accord avec les résultats obtenus précédemment.

1.3.4.3 Perméabilité à l'air dans l'EDZ

On appelle EDZ (Excavation Damaged Zone) la zone située autour du tunnel, et qui a été endommagée mécaniquement lors du creusement du tunnel à l'explosif. L'EDZ se caractérise par une augmentation de la fracturation, et donc de la perméabilité (Bossart *et al.*, 2002). Afin de déterminer l'extension de l'EDZ, des mesures de perméabilité à l'air par mise sous vide et mesures de pression et débit ont été effectuées à différentes

profondeurs dans certains des forages Perm, qui ont été forés latéralement à partir des murs du tunnel (Annexe A et Wassermann *et al.* (2011)). Les profils de perméabilité obtenus dans les forages Perm montrent que la perméabilité à l'air est de l'ordre de 10^{-14} m² sur le premier mètre, puis diminue ensuite d'au moins un ordre de grandeur (Wassermann *et al.*, 2011). L'EDZ s'étend donc sur 1 m autour du tunnel, soit proche de la valeur du rayon du tunnel, comme cela a été montré dans d'autres tunnels (Bossart *et al.*, 2002).

1.3.5 Conclusion

Le Laboratoire Naturel de Roselend est un lieu privilégié pour l'expérimentation en site naturel. Il est très bien instrumenté, et on y dispose de plus de 15 ans de mesures météorologiques, hydrogéologiques et mécaniques. A l'origine dédiés à l'étude des phénomènes physiques et chimiques associés au cycle sismique, les travaux menés au Laboratoire Naturel de Roselend cherchent à comprendre de manière plus générale les phénomènes de transfert d'eau, de gaz et de solutés liés à la météorologie, au vivant, à l'érosion et à l'action de l'homme sur la géosphère. Le Laboratoire Naturel de Roselend, avec ses aménagements les plus récents, constitue donc un cadre idéal pour mener à bien les expériences réalisées pendant cette thèse, permettant d'améliorer la compréhension de la migration des gaz dans les milieux fracturés.

Chapitre 2

Détermination des paramètres pneumatiques au Laboratoire Naturel de Roselend

Pour interpréter les mesures de gaz réalisées au Laboratoire Naturel de Roselend, pour préparer et dimensionner les expériences de traçage, ou encore pour transposer les résultats obtenus à d'autres sites, il est nécessaire de connaître le milieu géologique dans lequel les gaz migrent, et en particulier les différents paramètres qui contrôlent le transport. Les équations qui décrivent le transport, présentées en Section 1.1, font apparaître plusieurs paramètres propres au milieu rocheux : la perméabilité et la porosité de la roche, ainsi que les paramètres utilisés pour exprimer les perméabilités relatives et la pression capillaire, en particulier les paramètres de Van Genuchten. La perméabilité et la porosité ont déjà fait l'objet d'études au Laboratoire Naturel de Roselend (cf. Section 1.3), mais leur détermination s'est faite à partir d'écoulements d'eau. Dans ce chapitre, la perméabilité et la porosité à l'air des roches du Laboratoire Naturel de Roselend sont déterminées.

Pour cela, une série d'expériences a été réalisée, sous la forme d'injections pneumatiques et de mesures des fluctuations de pression. Ces expériences ont tout d'abord fait l'objet d'une interprétation grâce à des simulations numériques 3D dans le cadre d'une collaboration avec Pierre M. Adler (UMR Sisyphe, Université Pierre et Marie Curie, Paris). Afin de m'approprier la simulation et ses différents outils et d'aller plus loin dans l'interprétation, je suis ensuite revenue sur ces données et simulations. Mon travail a d'une part consisté à reprendre les simulations 3D en ajoutant une analyse de sensibilité des résultats aux paramètres et une quantification des incertitudes. D'autre part, j'ai complété l'interprétation des données par des relations analytiques et des modèles 1D, plus faciles à mettre en œuvre que les simulations 3D. Pour finir, les différentes méthodes expérimentales ainsi que les différents modèles d'interprétation sont comparés, et une synthèse des résultats obtenus est présentée.

2.1 Étude expérimentale et numérique de la perméabilité et de la porosité à différentes échelles

Les résultats présentés dans cette section ont fait l'objet d'un article publié en 2013 dans *Water Resources Research*. Cet article est inséré ci-dessous après une présentation des méthodes et résultats principaux obtenus.

Il existe deux grandes méthodes expérimentales permettant de déduire la perméabilité du milieu, qui sont utilisées dans des forages en zone non saturée ou dans la nappe : injection de fluide à débit constant (pompage d'essai ou test d'injection pneumatique) et réponse des chroniques de pression à des forçages extérieurs (pression atmosphérique, marées). Les deux méthodes ont été appliquées dans la chambre C pour déterminer la perméabilité à l'air du milieu. Des tests d'injection pneumatiques ont par ailleurs été réalisés de manière systématique dans les forages Perm de la paroi du tunnel, et les forages SC dans la carrière, pour étudier des échelles et des profondeurs différentes.

Dans le cadre d'une collaboration avec Pierre Adler et de la thèse de Tan Minh Vu, à l'UMR Sisyphe (UPMC, Paris), ces expériences ont été interprétées par des simulations numériques 3D en milieu poreux équivalent afin de déduire la porosité et la perméabilité à l'air du milieu. Les simulations numériques ont été réalisées par Vu (2012), avec un code en volumes finis qu'il a lui-même écrit. Le modèle utilisé ne considère que l'écoulement d'air, l'eau étant considérée immobile.

Les ordres de grandeur des perméabilités obtenues sont en accord avec les résultats obtenus précédemment au Laboratoire Naturel de Roselend, rappelés dans la Section 1.3. Les simulations numériques réalisées pour la géométrie 3D des forages et de la chambre permettent de valider une formule analytique très couramment utilisée dans la littérature pour estimer la perméabilité à partir d'un test d'injection pneumatique. La perméabilité obtenue dans la chambre C est aussi une validation de l'étanchéité de la paroi en béton qui l'isole. Les valeurs de porosité obtenues par simulation sont dans la moyenne des mesures réalisées au laboratoire sur des échantillons de roche, entre 0,33 et 9 % (Pili *et al.*, 2008a; Richon *et al.*, 2005). Les résultats obtenus par les deux méthodes sont comparés, et une interprétation en termes d'échelle spatiale est proposée.

2.1.1 *Field and numerical determinations of pneumatic flow parameters of unsaturated fractured porous rocks on various scales (article)*

Field and numerical determinations of pneumatic flow parameters of unsaturated fractured porous rocks on various scales

S. Guillon,^{1,2} M. T. Vu,³ E. Pili,^{1,2} and P. M. Adler³

Received 6 October 2012; revised 4 April 2013; accepted 11 April 2013.

[1] Air permeability is measured in the fractured crystalline rocks of the Roselend Natural Laboratory (France). Single-hole pneumatic injection tests as well as differential barometric pressure monitoring are conducted on scales ranging from 1 to 50 m, in both shallow and deep boreholes, as well as in an isolated 60 m³ chamber at 55 m depth. The field experiments are interpreted using numerical simulations in equivalent homogeneous porous media with their real 3-D geometry in order to estimate pneumatic parameters. For pneumatic injection tests, steady-state data first allow to estimate air permeability. Then, pressure recovery after a pneumatic injection test allows to estimate the air-filled porosity. Comparison between the various studied cases clarifies the influence of the boundary conditions on the accuracy of the often used 1-D estimate of air permeability. It also shows that permeabilities correlate slightly with fracture density. In the chamber, a 1 order-of-magnitude difference is found between the air permeabilities obtained from pneumatic injection tests and from differential barometric pressure monitoring. This discrepancy is interpreted as a scale effect resulting from the approximation of the heterogeneous fractured rock by a homogeneous numerical model. The difference between the rock volumes investigated by pneumatic injection tests and by differential barometric pressure monitoring may also play a role. No clear dependence of air permeability on saturation has been found so far.

Citation: Guillon, S., M. T. Vu, E. Pili, and P. M. Adler (2013), Field and numerical determinations of pneumatic flow parameters of unsaturated fractured porous rocks on various scales, *Water Resour. Res.*, 49, doi:10.1002/wrcr.20263.

1. Introduction

[2] Gas flow and transport in unsaturated fractured rocks is of high practical and theoretical interest [Berkowitz, 2002]. Unsaturated fractured geological media are ubiquitous and are of great importance in a number of contexts: underground waste storage [Illman and Hughson, 2005], CO₂ sequestration [Oldenburg et al., 2010], compressed-air energy storage [Kim et al., 2012], remediation of contaminated sites [Switzer and Kosson, 2007], or detection of underground nuclear explosions in the framework of the Comprehensive Nuclear-Test-Ban Treaty [Sun and Carrigan, 2012]. On the theoretical side, several conceptual and mathematical models exist to represent flow and transport in fractured porous media or fractured networks [Long et al., 1982; Bogdanov et al., 2003].

[3] This work is part of a research project aiming at the understanding of gas flow and transport in unsaturated fractured rocks [Pili et al., 2008b] through experiments conducted at the Roselend Natural Laboratory. This underground

research laboratory is well documented thanks to many experiments that have been conducted over the years, such as fracture analyses, tracer experiments as well as long-term monitoring of water and air compositions [Pili et al., 2004; Richon et al., 2005; Patriarche et al., 2007; Pili et al., 2008a]. While water permeability has already been determined at the field scale [Patriarche et al., 2007; Pili et al., 2008a], we address here air flow in unsaturated rocks, and the determination of two key pneumatic parameters, air permeability and air-filled porosity. At the Roselend Natural Laboratory, this knowledge will be of particular importance for forthcoming gas tracer experiments.

[4] Different experimental and numerical approaches exist and have been used to estimate air permeability and air-filled porosity in fractured rocks. Pneumatic injection tests were often conducted in boreholes to estimate air permeability on scales ranging from 1 to 20 m [LeCain, 1997; Bossart et al., 2002; Illman, 2004]. For single as well as cross-holes tests, the methods that are used to estimate permeability are the following: steady-state analyses [Kearl et al., 1990; Baehr and Hult, 1991; Jakubick and Franz, 1993; Guzman et al., 1996; LeCain, 1997; Bossart et al., 2002; Illman and Neuman, 2003], type curve analyses [Illman and Neuman, 2000, 2001; Illman, 2005], 3-D numerical inversions with homogeneous or heterogeneous models [Vesselinov et al., 2001a; Vesselinov and Neuman, 2001; Zhou et al., 2003; Ni and Yeh, 2008], and asymptotic analyses [Illman and Tartakovsky, 2005]. Here pneumatic injection tests are conducted in single holes in three settings, having different locations, sizes and geometries.

¹CEA, DAM, DIF, F-91297, Arpajon, France.

²Institut de Physique du Globe de Paris, Sorbonne Paris Cité, Univ Paris Diderot, UMR 7154 CNRS Paris, France.

³UPMC Sisyphe, 4 place Jussieu F-75252, ParisCedex 05 France.

Corresponding author: S. Guillon, CEA, DAM, DIF, DASE/SRCE, Bruyeres le chatel, F-91297 Arpajon, France. (sophie.guillon@cea.fr)

Analyses of steady state as well as pressure recovery are performed using 3-D numerical simulations in an equivalent homogeneous porous medium, in order to estimate both the air permeability and the air-filled porosity. The use of an equivalent porous model gives first estimates of the flow parameters, that can be used for future simulations of gas flow and transport, and that could be refined when necessary using dual continuum or discrete fracture models [Bogdanov *et al.*, 2003].

[5] Differential barometric pressure monitoring is also used to estimate air permeability in boreholes [Ahlers *et al.*, 1999; Neeper, 2002; Unger *et al.*, 2004]. Here, this second method is applied in only one setting, and 3-D numerical simulations in an equivalent porous medium are again used to estimate the pneumatic parameters. This second method can only estimate the ratio of air permeability to air-filled porosity, but this is very valuable as it is easily performed and can reveal temporal variations of this ratio.

[6] Here we propose an integrated study of pneumatic parameters determinations in the field. The values of the two parameters are determined and compared on various scales, and the use of 3-D versus 1-D numerical models to estimate the permeability is discussed. The results obtained with two experimental methods are compared.

[7] This paper is organized as follows. The experimental site and the three locations that are investigated are presented in section 2. Section 3 details the two experimental methods used for field permeability determination. Section 4 is a brief summary of the conceptual model, the equations solved by the code and the numerical inversion of the experimental data. Section 5 presents the experimental and numerical results for the three types of locations. Finally, section 6 discusses the use of a simplified analytical formula, the relationships between permeability and other rocks parameters.

2. The Roselend Natural Laboratory

[8] The site is located in the South-East of France, 25 km south-west from Mont Blanc. It belongs to the External Crystalline Massifs of the Western Alps. The Roselend Natural Laboratory is composed of a dead-end horizontal tunnel at an elevation of 1576 m, located below an abandoned quarry. The tunnel is 128 m long and ca. 2.4 m in diameter. It is hosted in fractured gneisses and micaschists and capped with the same rocks with an increasing thickness from 7 m at the entrance to 55 m at its closed end (Figure 1a). The tunnel is located nearby and above the Roselend lake. Head measurements in two piezometers located between the tunnel and the lake indicate that the water table level is approximately 20 m below the tunnel.

[9] At the end of the tunnel, a chamber whose length and volume are 20 m and 60 m³, respectively, is isolated by a concrete bulkhead, equipped with a door and connecting plates (Figures 1a and 1d). It is referred to as chamber C. Since Wassermann *et al.* [2011] estimated the thickness of the Excavation Damaged Zone (EDZ) to be approximately 1 m in the tunnel, the bulkhead is anchored by more than 1 m all around the tunnel section (ceiling, walls and floor). The bulkhead is air-tight by design; the door and connecting plates were independently air-proofed in the laboratory at 1600 mbar absolute pressure. A gas tracer experiment was

conducted in chamber C and no direct leakage was observed on the bulkhead, which confirms that it is air-tight.

[10] Five 2 m long horizontal boreholes, drilled in the last 50 m of the tunnel wall (Figure 1b) are used in this study. They are designated by Perm 4 to Perm 8. Ten 10 m deep vertical boreholes, designated by SC1 to SC10, were also drilled at the topographic surface (Figure 1c). They are located 55 m above chamber C. The characteristic dimensions of these three types of tested intervals are summarized in Table 1.

[11] The fracture density in Perm and SC boreholes is obtained by counting the number of fracture traces using a borehole televiewer and visual examination of the cores. They are summarized in Tables 2 and 3. The fracture density in chamber C is 0.3 m⁻¹ and was obtained by Patriarche *et al.* [2007] from the interpretation of fracture traces on the tunnel wall.

3. Experimental Methods

3.1. Pneumatic Injection Tests

[12] Pneumatic testing was already used successfully in sedimentary and crystalline rocks, for the characterization of the EDZ around underground excavations [Bossart *et al.*, 2002; Jakubick and Franz, 1993; Wassermann *et al.*, 2011], as well as for other purposes [LeCain, 1997; Cook *et al.*, 2003; Wang *et al.*, 1999; Kim *et al.*, 2012]. The method is based on the measurement and interpretation of the pneumatic response to air injection into (or air extraction out of) the volume of a rock mass. The experimental setup of a pneumatic injection test is described as follows. Using an air compressor (Metabo, Power 150) and a thermal mass flow regulator (Brooks Instruments, SLA 5850), air is injected at a constant rate into the borehole, which is isolated from the atmosphere by an inflatable packer. Pressure in the packed-off volume is monitored with a time step of 5 s using a pressure transducer (Keller, PAA23RY), and a data logger (Fluke, Hydra 2635A). Because of air injection, pressure increases in the borehole. After 5 min to 20 h, pressure reaches a plateau. Then, air injection is stopped and the subsequent pressure decrease is monitored, typically during 2–20 h. When possible, this pneumatic injection test is conducted with at least two air injection rates. This method is used in the horizontal boreholes Perm in the tunnel wall and in the vertical boreholes SC at the topographic surface.

[13] A similar method is used in chamber C, with the air-tight bulkhead playing the role of the packer. Air is injected at constant pressure into the chamber with a blower (ElmoRiechle, G-BH1) equipped with a relief valve adjusted to around 200 mbar overpressure. In this case, the air injection flow rate is not controlled; it is very high during the first minutes and the target pressure is rapidly reached. Then, a small and constant portion of the air flow is injected into chamber C, while the rest simply flows through the check valve back into the tunnel. A volumeter (Gallus, 6/20 SD) monitors the air injection flow rate into chamber C, and a barometric pressure sensor (GE Sensing, RPT 410) monitors pressure in chamber C, using a data logger (Campbell Scientific, CR 1000) and a 15 min time step. The constant overpressure is maintained during 1–60 h. When the blower is turned off, the pressure

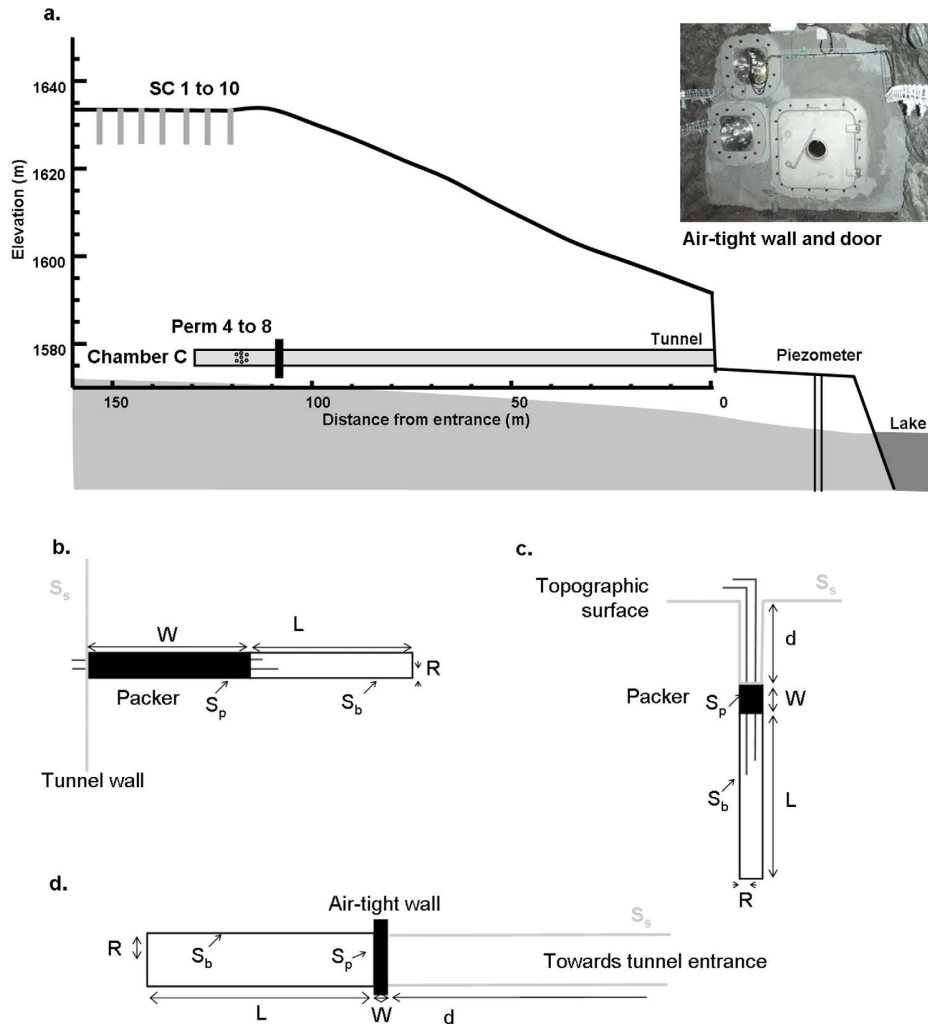


Figure 1. The experimental site. (a) Cross section of the Roselend Natural Laboratory with the locations and names of the boreholes and the chamber used in this study; inset: the air-tight bulkhead and door viewed from the chamber. (b) Horizontal boreholes Perm in the tunnel wall. (c) Vertical boreholes SC at the surface. (d) Chamber C at the end of the tunnel.

decrease is monitored. In chamber C, such pneumatic injection tests are repeated several times during 1 year, during both dry and wet periods.

3.2. Differential Barometric Pressure Monitoring

[14] Pressure monitoring in boreholes was already used to characterize permeability in the unsaturated zone [Ahlers *et al.*, 1999; Neeper, 2002; Unger *et al.*, 2004; Cook *et al.*, 2003]. This method is applied here to chamber C. Pressure was monitored during more than 3 months in both the chamber and the atmosphere, by two pressure sensors (GE

Sensing, RPT 410) logged on the same data logger (Campbell Scientific, CR 1000) with a 15 min time step.

4. Numerical Methods

4.1. Conceptual Model

[15] Here, we consider single phase air flow through a homogeneous porous medium with an equivalent air

Table 2. Permeability and Porosity Estimated From Pneumatic Injection Tests in the Tunnel Boreholes Perm

Borehole Name	Flow Rate, M_b ($L \min^{-1}$)	Overpressure, ΔP (mbar)	Permeability, k (m^2)	Porosity, ε (%)	Fracture Density, (m^{-1})
Perm 4	0.1	1450	6×10^{-17}		0
Perm 5	0.2	200	1×10^{-15}	2.7	1.9
Perm 6	0.2	58	6×10^{-15}	2.5	0.8
Perm 6	0.8	156	8×10^{-15}	3.2	0.8
Perm 7	0.2	71	4×10^{-15}	3.3	2.6
Perm 7	0.4	104	5×10^{-15}		2.6
Perm 8	0.2	504	6×10^{-16}	2.2	0.4

Table 1. Characteristic Dimensions of the Three Types of Tested Intervals

	Packer Depth, d (m)	Packer Length, W (m)	Test Interval Length, L (m)	Radius, R (cm)
Borehole perm	0	1	1.5	4
Borehole SC	3	1	6	5
Chamber C ^a	108	1	20	120

^a“packer” designates the air-tight bulkhead, and d corresponds to the distance between this bulkhead and the tunnel entrance.

Table 3. Permeability Estimated From Pneumatic Injection Tests in the Surface Boreholes SC

Borehole name	Flow Rate, M_b (L min ⁻¹)	Overpressure, ΔP (mbar)	Permeability, k (m ²)	Porosity, ε (%)	Fracture Density, (m ⁻¹)
SC1	1	536	7×10^{-16}	1.5	1.0
SC1	0.2	317	5×10^{-16}	1.8	1.0
SC2	0.2	28	1×10^{-15}	0.2	1.6
SC3	0.2	18	1×10^{-16}	0.5	1.0
SC4	0.2	150	8×10^{-16}	3.0	1.1
SC6	5	25	8×10^{-14}		1.0
SC7	5	75	2×10^{-14}	1.3	1.4
SC7	2	30	3×10^{-14}	1.4	1.4
SC9	5	21	1×10^{-13}	1.6	2.2
SC9	2	9	1×10^{-13}	1.4	2.2
SC10	2	176	5×10^{-15}	1.6	2.1
SC10	0.5	85	4×10^{-15}	2.5	2.1

permeability k (m²) which takes into account the presence of fractures. An important approximation is made by calculating the pressure field and the flow rates using a Darcy equation and replacing the fracture network by a homogeneous porous medium, but such an approximation was justified by Long *et al.* [1982] for large samples, large fracture density and random fracture orientation. Such an approach would be precise when the size of the investigated domain is much larger than the size of the fractures. In this respect, Patriarche *et al.* [2007] showed that the fractures along the Roselend tunnel belong to two families; the first one consists of small fractures with an average diameter of 2.9 m and a random orientation, while the second one consists of large subvertical fractures with an average diameter of 15 m. Here, the three types of experiments can be characterized by the following dimensions: the characteristic lengths of the boreholes Perm, SC, and chamber C are 1.5, 6, and 20 m, respectively (Table 1). Therefore, the continuum approximation is expected to be rough for boreholes Perm, acceptable for boreholes SC and good for chamber C.

[16] A detailed study of the pressure in fracture networks is possible and has already been conducted for different applications by Mourzenko *et al.* [2011]. However, such a study relies on a realistic model of the fracture network for each borehole, taking into account the observed fracture densities (Tables 2 and 3). Such detailed models would most probably lead to permeability estimations with large variations as was observed by Bogdanov *et al.* [2003]. Even for the worst case of boreholes Perm, the permeability estimations obtained in this study are in a narrow range, when the borehole Perm 4, which does not cross any fracture, is omitted. Last, the generation of fracture networks requires a larger number of assumptions than the one of a continuous model where the only unknowns are permeability and porosity. Thus, it was preferable to start with a simple homogeneous model to provide a first estimation of the permeabilities and porosities in all cases.

4.2. Governing Equations

[17] Air is assumed to be isothermal and slightly compressible. The air density ρ (kg·m⁻³) is related to the pressure P (Pa) by

$$\rho = \rho_0 \frac{P}{P_0}, \quad (1)$$

where ρ_0 is the air density at the reference pressure P_0 . Note that the average atmospheric pressure P_0 is equal to 850 hPa for the studied site because of its elevation.

[18] Water is considered as motionless. Water saturation S_w is only taken into account by a reduction of the air-filled porosity ε and/or air permeability k . The Darcy velocity \mathbf{v} (m·s⁻¹) is given by Darcy's law

$$\mathbf{v} = -\frac{k}{\mu} \nabla P, \quad (2)$$

where μ (Pa·s) is the air viscosity. The mass flow rate of air q_m (kg·m⁻²·s⁻¹) is expressed as

$$q_m = \rho \mathbf{v}. \quad (3)$$

[19] Mass conservation implies

$$\frac{\partial \rho \varepsilon}{\partial t} + \nabla \cdot (\rho \mathbf{v}) = 0. \quad (4)$$

[20] Introduction of equations (1) and (2) into (4) yields

$$\frac{\partial P}{\partial t} - \frac{k}{\mu \varepsilon} \nabla \cdot (P \nabla P) = 0. \quad (5)$$

[21] The diffusivity D (m²·s⁻¹) is defined as

$$D = \frac{k P_0}{\mu \varepsilon}. \quad (6)$$

[22] Equation (5) can be made dimensionless by introducing a characteristic length scale L and a pressure scale P_0 . Values for L in each case are listed in Table 1. Thus, a system of dimensionless variables which are indicated by primes is defined

$$x' = \frac{x}{L} \quad P' = \frac{P}{P_0} \quad t' = \frac{t}{T} \quad T = \frac{L^2}{D}. \quad (7)$$

[23] The characteristic time T corresponds to diffusion since equation (5) is a diffusion equation. For simplicity, primes are omitted and equation (5) becomes, in dimensionless units,

$$\frac{\partial P}{\partial t} - \nabla \cdot (P \nabla P) = 0, \quad (8)$$

or,

$$\frac{\partial P}{\partial t} = P \nabla^2 P + \nabla P \cdot \nabla P, \quad (9)$$

or,

$$\frac{\partial P}{\partial t} = \frac{1}{2} \nabla^2 P^2. \quad (10)$$

[24] A no flux boundary condition is assumed at $z = z_b$ corresponding to the water table, 20 m below the tunnel.

The same condition applies on the vertical boundaries, sufficiently far from the boreholes or the chamber. The air-tight bulkhead or the packers are considered as impermeable, and a no-flux condition is applied on their surface S_p . These boundary conditions are summarized as

$$\mathbf{n} \cdot \nabla P = 0 \quad \text{for } z = z_b \quad \text{and} \quad \mathbf{x} \in S_p, \quad (11)$$

where \mathbf{n} is the unit normal to the boundaries.

[25] Equation (10) is solved by the finite difference method [Peyret and Taylor, 1985]. The grid spacing Δ is equal to 0.02 m for simulations of boreholes Perm and SC; Δ is equal to 0.4 m for the larger scale simulations of chamber C.

[26] All the bounding surfaces (ground, water table, borehole, and tunnel walls) are defined by means of the Level Set Method. In this method, the real surface is defined by a distance function based on the usual fixed Cartesian grid. The interface is represented by a polygonal smooth surface at the zero level of this distance function. With this method, tilted surfaces are represented more accurately than with a standard discretization. Moreover, since the boundary conditions are written on the surface itself, the numerical codes are more precise for the same discretization than the standard codes [Sethian and Smerka, 2003].

[27] The iteration method is explicit in time with a time step Δt . A stability analysis can be easily performed in the one-dimensional case [Hirt, 1968] and it implies

$$\frac{\Delta t}{\Delta^2} \leq 2/5. \quad (12)$$

[28] This approximation gives an order of magnitude for Δt in the computations, namely less than 0.01 s for boreholes Perm and SC, and less than 1 s for chamber C.

4.3. Interpretation of the Pneumatic Injection Tests

[29] A test consists of three parts. The first period is the rapid transient pressure buildup in response to air injection, and is discarded here as it mainly involves borehole storage effects and would not be easily modeled. In the second part, both pressure and injection flow rate are constant in time. In the third one, injection is stopped and pressure decreases.

[30] First, consider steady-state conditions. When air is injected into a borehole, an equilibrium state is reached after a variable period of time, and the pressure in the borehole and the injection flow rate are constant. Equation (10) is simplified as

$$\nabla^2 P^2 = 0. \quad (13)$$

[31] The boundary conditions are, for all times,

$$P(\mathbf{x}, t) = P_0 \quad \text{for } \mathbf{x} \in S_s, \quad P(\mathbf{x}, t) = P_0 + \Delta P \quad \text{for } \mathbf{x} \in \text{borehole or chamber C}, \quad (14)$$

where ΔP is the steady-state overpressure in the borehole or chamber C, and S_s is the topographic surface and tunnel wall where barometric conditions apply (Figure 1). In this

situation, the mass flow rate M_b through the packed-off borehole surface S_b should be equal to the mass flow rate of air M_s through the surface S_s

$$M_s = M_b \quad \text{at } t = \infty. \quad (15)$$

[32] In equation (13), the pressure field is independent of permeability, and can be calculated for a fixed pressure in the borehole. The mass flow rate M_b injected through the borehole surface is measured during the experiment. The permeability k can be deduced from

$$k = \frac{M_b}{\iint_{S_b} -\frac{\rho}{\mu} \nabla P \cdot d\mathbf{s}}. \quad (16)$$

[33] Second, consider unsteady conditions. Equation (10) is solved as explained above in order to calculate the pressure decrease after the end of the injection. The initial condition in the injection zone (borehole or chamber C) is

$$P(\mathbf{x}, t = 0) = P_0 + \Delta P \quad \text{for } \mathbf{x} \in \text{borehole or chamber C}, \quad (17)$$

and the boundary condition on the surface S_s is, for all times,

$$P(\mathbf{x}, t) = P_0 \quad \text{for } \mathbf{x} \in S_s. \quad (18)$$

[34] In this case, the diffusivity is needed, which is proportional to the ratio of permeability and porosity. The air permeability is estimated from the steady-state experiment as explained previously (equation (16)). The air-filled porosity is obtained by fitting the calculated and experimental pressure evolutions. The chosen value of porosity is the one that minimizes the sum of the square differences between the numerical and experimental data.

4.4. Interpretation of Differential Barometric Pressure Monitoring

[35] The atmospheric pressure is measured as a function of time at the Roselend site and is used in equation (8) as the surface boundary condition

$$P(\mathbf{x}, t) = P_{\text{atm}}(t) \quad \text{for } \mathbf{x} \in S_s. \quad (19)$$

[36] The corresponding evolution of the pressure in chamber C is calculated. The diffusivity D is chosen in order to fit this calculated pressure in chamber C and the experimental data.

5. Results

5.1. Tunnel Boreholes Perm

[37] Pneumatic injection tests have been conducted in the horizontal boreholes Perm. The air injection rates range from 0.2 to 0.8 L min⁻¹. In all the settings and experiments presented here, overpressures are smaller than 500 mbar, and they should not induce any deformation of the medium or fracture opening. A typical pressure evolution during a pneumatic injection test in a tunnel borehole Perm is presented in Figure 2a. In the borehole Perm 6, an air injection

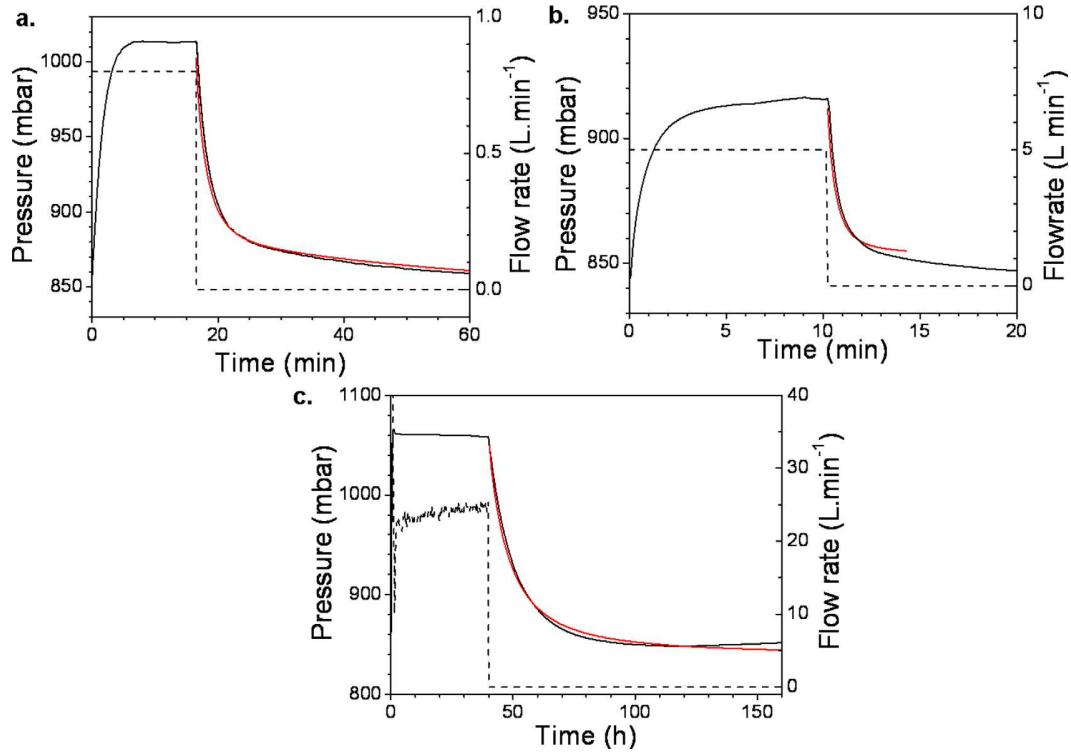


Figure 2. Pressure variations (black solid line) and air injection flow rate (dotted line) measured during and after air injections into the three types of tested intervals. The pressure decrease after the end of the injection is reproduced by numerical simulation (red), using the steady-state permeability. (a) Tunnel borehole Perm 6. (b) Surface borehole SC 7. (c) Chamber C (data from 21 September 2011). The experimental parameters and the computed permeabilities are given in Tables 1–4. The sum of the square differences between simulated and measured pressure divided by the number of data points is 8.0 for borehole Perm 6, 3.6 for borehole SC 7 and 28 for chamber C.

flow rate of 0.8 L min^{-1} leads to an overpressure of 156 mbar. Pressure increases and reaches steady state after 10 min. At the end of the air injection, pressure decreases to the atmospheric value in less than 1 h. As explained in section 4, the air permeability k is deduced from the steady-state data (equation (16)). k is further used to interpret the transient pressure decrease and deduce the porosity.

[38] Figure 3a shows the pressure field and the air streamlines around a tunnel borehole, Perm 6, at steady state. The pressure field is elongated along the borehole axis z , and pressure decreases rapidly with the distance x from the borehole. Air flows perpendicular to the borehole axis, but streamlines are bent towards the tunnel wall which is the only atmospheric pressure boundary. As noticed in section 4.1, the smooth pressure field calculated with an equivalent porous model can locally differ from the real pressure field, but the average fracture density is large enough for this approximation to be done.

[39] The computed permeabilities range from 6×10^{-17} to $8 \times 10^{-15} \text{ m}^2$, and porosities from 2.2 to 3.3% (Table 2). The 2 orders of magnitude between the permeabilities of boreholes located only 1 m apart reveal the spatial heterogeneity. Since the minimum distance between two boreholes is 1 m and Figure 3a shows that the pressure perturbation is negligible at this distance, interactions between adjacent boreholes are not considered here.

[40] A small increase in permeability with the injection flow rate or overpressure is observed (Table 2). This was also observed by Illman [2005], who explained it by the existence of some water flow. At high overpressures, water is displaced by air which increases the local air-filled porosity and air permeability.

5.2. Surface Boreholes SC

[41] In the surface boreholes SC, the air injection rates range from 0.2 to 5 L min^{-1} (Table 3). Figure 2b shows the pressure monitored in the vertical surface borehole SC7 during air injection at 5 L min^{-1} . As for tunnel boreholes Perm, the pressure increases and reaches a maximum after about 10 min. Pressure decreases from its steady state value to the atmospheric value in less than 1 h.

[42] The computed permeabilities in boreholes SC range from 1×10^{-16} to $1 \times 10^{-13} \text{ m}^2$, and the porosities from 0.2 to 3.0% (Table 3). Permeabilities vary by 3 orders of magnitude over a distance of 20 m. Spatial heterogeneity is strong in the subsurface, as well as for the tunnel boreholes Perm at 55 m depth.

[43] The pressure field and the streamlines around a surface borehole SC are shown in Figure 3b. Results are very similar to those in the tunnel boreholes Perm with a rapid pressure attenuation with distance x and flow toward the surface which is the atmospheric pressure boundary.

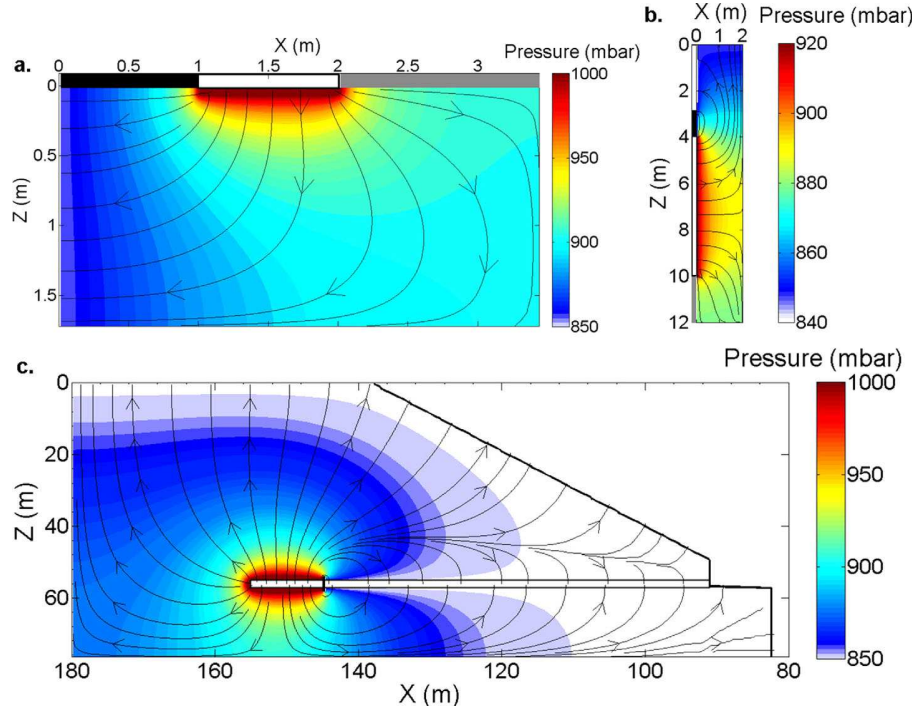


Figure 3. 2-D vertical cross sections of 3-D air pressure field and streamlines at steady state during pneumatic injection tests. (a) Tunnel borehole Perm 6. (b) Surface borehole SC 7. (c) Chamber C (same data as in Figure 2).

5.3. Chamber C

[44] Figure 2c shows the pressure monitored in chamber C during a pneumatic injection test. As explained in section 3, a constant pressure is imposed during the pneumatic injection tests in chamber C, whereas a constant flow rate is imposed in boreholes Perm and SC. Thus, the pressure evolution in Figure 2c is different from those in Figures 2a and 2b. A flow rate of 24 L min^{-1} is needed to maintain an overpressure of 200 mbar in chamber C. Steady state is

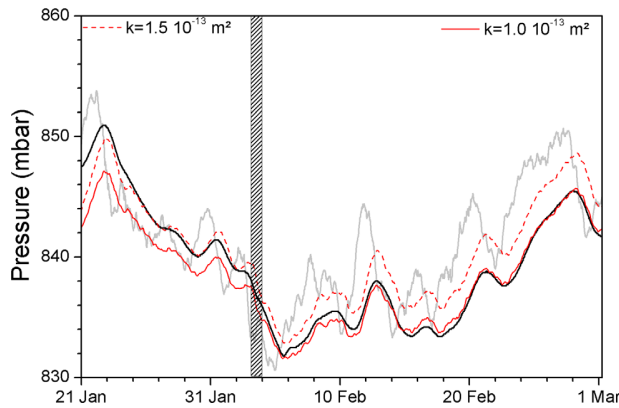


Figure 4. Pressure fluctuations measured from January to March 2012, in chamber C (black line) and in the atmosphere (grey line); numerical simulation of pressure in chamber C (red solid and dotted lines) for two values of the permeability k . The vertical shaded zone separates two successive periods, which are discussed in section 6.3.

reached after a few minutes, even if a small pressure decrease is observed for long injection times (0.2% in 40 h in Figure 2c). After the end of the injection, the pressure decreases during more than 24 h to reach the atmospheric value. The computed permeabilities and porosities for all the successive experiments are in a narrow range (Table 4): the mean and standard deviation for all the tests in chamber C are $6.4 \pm 1.5 \times 10^{-15} \text{ m}^2$ and $4.6 \pm 0.07\%$.

[45] Figure 3c shows the steady-state pressure field and the corresponding streamlines around the chamber during a pneumatic injection test with an overpressure of 200 mbar. Pressure decreases rapidly in a few meters around the chamber. Around 10 m above the tunnel, an imaginary surface can be drawn, that separates an upper zone connected to the topographic surface and a lower zone connected to the tunnel. Only 15% of the air flow is bypassed around the air-tight bulkhead through the tunnel, while 85% of the flow occurs through the topographic surface. This proportion is related to the geometry of the topographic surface and tunnel wall, which are at atmospheric pressure. Such a proportion is not observed in the boreholes SC and in the boreholes Perm, where the surface which is at atmospheric pressure is perpendicular to the injection zone.

[46] Figure 4 shows the pressure fluctuations measured in both the chamber C and the atmosphere. Relatively to the atmospheric pressure, pressure fluctuations in the chamber C are attenuated by a factor between 0.4 and 0.8, with a lag of 24 h. As only the diffusivity can be determined by this method (see section 4), a value is needed for the porosity in order to estimate the permeability. The estimations of the porosity of the rocks at the Roselend Natural Laboratory range from 0.3 to 5% [Richon et al., 2005; Pili et al.,

Table 4. Permeability and Porosity Estimated From Pneumatic Injection Tests in Chamber C

Date	Flow Rate, M_b (L min ⁻¹)	Overpressure, ΔP (mbar)	Permeability, k (m ²)	Porosity, ε (%)
14 Sep 2011	23	210	8×10^{-15}	4.7
20 Sep 2011	24	213	8×10^{-15}	4.6
17 Oct 2011	18	221	8×10^{-15}	4.7
14 Jan 2012	18	216	6×10^{-15}	4.5
24 Mar 2012	15	202	5×10^{-15}	4.6
30 Mar 2012	15	212	5×10^{-15}	4.6
6 Apr 2012	15	212	5×10^{-15}	4.6

2008a]. In consistence with these estimations and according to the results obtained from pneumatic injection tests in chamber C, the air-filled porosity is supposed to be 5%. A good agreement between the pressure calculated in the chamber and the data are obtained for a permeability of 1.5×10^{-13} m², at least in the first part of the graph from 21 January 2012 until 4 February 2012. From 4 February until 4 March 2012, Figure 4 shows that a better fit is obtained with a permeability of 1.0×10^{-13} m².

[47] Tables 4 and 5 summarize the results for all the pneumatic injection tests and for the differential barometric pressure monitoring periods, respectively.

6. Discussion

6.1. Analytical Interpretation and Numerical Simulations of Pneumatic Injection Tests

[48] In the approximation of a radial flow around the air injection interval, air permeability is given by [Bossart *et al.*, 2002; Jakubick and Franz, 1993]

$$k = \frac{\mu Z}{\pi L} \frac{T}{T_{\text{std}}} q_{ss} \frac{P_{\text{std}}}{P_{ss}^2 - P_0^2} \ln \left(\frac{R_e}{R} \right), \quad (20)$$

where q_{ss} is the air flow rate at steady-state conditions (m³·s⁻¹), P_{ss} the pressure in borehole under steady-state conditions (Pa), P_{std} the pressure under standard conditions (1013.25 hPa), P_0 the average atmospheric pressure (850 hPa), T the temperature in the borehole or chamber C (283 K), T_{std} the temperature under standard conditions (298.15 K), Z the gas deviation factor (0.982), μ the air viscosity (1.8110^{-5} Pa·s), L the length of the injection interval (m), R the borehole radius (m), and R_e the radius of influence (m). In equation (20), R_e is the distance from the injection interval to the point at which there is no significant pressure increase due to the pneumatic injection.

[49] In this approach, only steady-state data are used, and the porosity cannot be estimated. The radius of influence is often approximated by the length of the injection interval L [Freifeld, 2001; Illman, 2004]. Here the pressure field around the injection volume is calculated by 3-D simulations, which provides an insight into the approximation of the radius of influence. According to these simulations, the pressure decreases logarithmically with the radial distance to the injection volume for all three locations. At a distance equal to the injection interval L , the pressure increase is less than 5%, indicating that this approximation of the radius of influence is acceptable for all cases. For

chamber C, the assumption of radial symmetry is violated, but it appears that the approximation of the radius of influence remains acceptable. Indeed, as the radius of influence only appears as a natural logarithm, it has little influence on the permeability, and the above approximation still applies in most cases.

[50] Permeability was determined with formula (20) for all the pneumatic injection tests, using the parameters in Table 1, and the above approximation for the radius of influence. Results are presented in Figure 5. The differences between the permeabilities estimated in the 1-D approximation and those estimated from numerical simulations in 3-D geometry range from -54 to 200%, with an average absolute difference of 30%. Even though the simplified analytical formula (20) gives permeabilities that are at first order correct, numerical simulations with the real 3-D geometry allow to obtain values for both permeability and porosity, with reduced uncertainty, whatever the geometry of the injection interval and the boundary conditions.

6.2. Influence of Fracture Density on Permeability

[51] In surface boreholes SC as well as tunnel boreholes Perm, permeability varies from one borehole to another, with up to 3 orders of magnitude difference in permeabilities estimated in nearby boreholes (Tables 2 and 3). The borehole Perm 4 is characterized by an absence of fracture trace and is associated with the lowest permeability value of 10^{-17} m². Thus, it probably corresponds to the matrix permeability. For scales from 1 to 10 m, this spatial variability is related to the heterogeneity of the fracture network. Figure 6, which gathers all observed data, shows a weak positive correlation between the logarithm of the gas permeability and the fracture density. Close to the surface, permeability and fracture density are on average higher than at depth.

6.3. Variability of the Permeability Measured in Chamber C With Various Methods and Role of Water Saturation

[52] In chamber C, air diffusivity obtained from differential barometric pressure monitoring is one order of magnitude higher than air diffusivity obtained from pneumatic injection tests (Tables 4 and 5). This could result either from an increase in air permeability, or a decrease in air-filled porosity, or more probably from a combination of both.

[53] A variation of water saturation cannot explain the discrepancy between the permeability values obtained from the two methods, as the expected behavior is opposite. Indeed, the sometimes observed increase in permeability with the overpressure (Tables 2 and 3) suggests that water can be displaced by the injected air during pneumatic injection tests. By contrast, during differential barometric

Table 5. Permeability Estimated From Differential Barometric Pressure Monitoring in Chamber C, with 5% Porosity

Date	Permeability, k (m ²)
2 Jul to 18 Jul 2011	1.5×10^{-13}
6 Aug to 11 Sep 2011	1.5×10^{-13}
21 Jan to 4 Feb 2012	1.5×10^{-13}
4 Feb to 4 Mar 2012	1.0×10^{-13}

pressure monitoring, the medium is only submitted to small natural pressure variations, and water saturation is expected to remain constant. If such variations of water saturation were to exist, the air permeability obtained from pneumatic injection tests should be the higher value, and this is not observed here.

[54] The discrepancy between the air permeability values obtained with two different methods from one single tested interval can be interpreted as a scale effect due to the difference of the sizes of the rock volume actually investigated [Hinds *et al.*, 2003]. Pneumatic injection tests in chamber C would give a permeability that is representative of the volume of rock surrounding the chamber, the size of which is related to the length of the chamber. The permeability estimated from differential barometric pressure monitoring integrates a larger rock volume up to the surface. For crystalline rocks [Brace, 1984; Clauser, 1992] as well as for other rock types [Neuman, 1994; Vesselinov *et al.*, 2001b; Hyun *et al.*, 2002; Illman, 2004, 2006], it has been shown that permeability increases with scale. The permeability estimated from differential barometric pressure monitoring is thus expected to be higher than the permeability estimated from pneumatic injection test in the same tested interval. Vesselinov *et al.* [2001b] proposed that this scale effect is an artifact, caused by the use of a homogeneous model as an approximation of a heterogeneous fractured medium. This scale effect would be suppressed by treating the modeled region as heterogeneous.

[55] The use of a single-phase flow model is another limitation that could partly explain the apparent contradiction between the two experimental methods. Numerical simulations of two-phase flow would give insights into the influence of pneumatic injection tests on saturation and water movements. Such a relation between air permeability and variations of water saturation could be observed with differential barometric pressure monitoring. In Figure 4, a

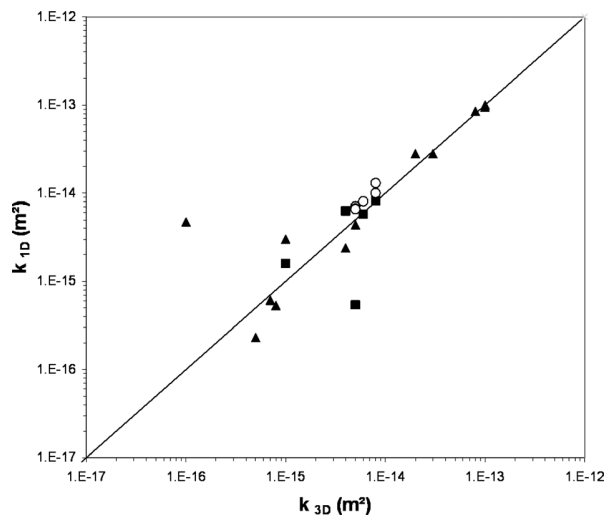


Figure 5. Permeability determined from steady-state data using equation (20) for a 1-D radial model versus permeability determined from numerical simulations in the real 3-D geometry. Data are for pneumatic injection tests in tunnel boreholes Perm (squares), surface boreholes SC (triangles), and chamber C (circles).

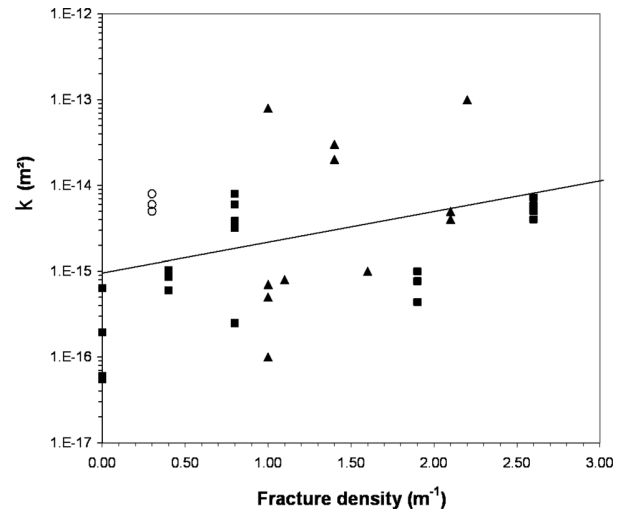


Figure 6. Permeability in the three cases as a function of fracture density in the tested interval. Data are for pneumatic injection tests in tunnel boreholes Perm (squares), surface boreholes SC (triangles) and chamber C (circles). The solid line is the best fit $y = 9.54e^{0.824x}$ with a correlation coefficient $R^2 = 0.14$

small decrease in air permeability, from 1.5×10^{-13} to $1.0 \times 10^{-13} \text{ m}^2$, can be seen between 4 and 8 February 2012, assuming that the air-filled porosity remains constant. Since differential barometric pressure monitoring reflects the natural conditions of the medium, especially in terms of water saturation, this decrease in air permeability would reveal a small increase in the water saturation of the rock. Available infiltration data and water drip rate measured at the roof of chamber C are currently not precise enough to identify such small changes in the medium. It is planned to use electric resistivity monitoring as a complementary tool for the monitoring of water saturation as in Daily *et al.* [1992].

7. Conclusion

[56] A thorough determination of pneumatic parameters in the field requires the acquisition and interpretation of many experimental data. Especially when dealing with heterogeneous fracture networks in variably saturated media, measurements must be repeated for various air flow rates, various locations and various hydrological conditions.

[57] Here we propose an integrated study of gas-phase flow parameters. Two experimental methods are used to determine air permeability, that can easily be implemented in the field, in a variety of settings and scales. In the Rose-lend Natural Laboratory, air permeability is investigated in deep and shallow boreholes, as well as in chamber C, by both pneumatic injection tests and differential barometric pressure monitoring.

[58] Experimental data are combined with numerical simulations to obtain both air permeability and air-filled porosity. Since each tested interval has its specific shape and boundary conditions, it is recommended to interpret the experimental data using 3-D numerical simulations. The widely used 1-D radial approximation leads to air

permeability values that differ on average of 30% from the 3-D simulations (from -54% to $+200\%$).

[59] The permeability values obtained here at different scales span four orders of magnitude, thus highlighting the strong heterogeneity of fractured rocks. In the chamber, a 1 order-of-magnitude difference is found between the air permeability values obtained from pneumatic injection tests and from differential barometric pressure monitoring. This discrepancy is interpreted as a scale effect resulting from the approximation of the heterogeneous fractured rock by a homogeneous numerical model. The difference between the rock volumes investigated by pneumatic injection tests and by differential barometric pressure monitoring may also play a role.

[60] The flow parameters obtained in this study will be used to interpret tracing experiments conducted at the Roselend Natural Laboratory with aqueous [Pili et al., 2008a] or gaseous tracers. They will also serve to design future tracing experiments at all scales.

[61] The isolated chamber C, one of the settings presented in this study, is a very useful tool which gives access to parameters on large scales, intermediate between the borehole and the regional scales. The experimental and numerical methods presented here for chamber C are also of interest in the design and validation of air- or water-tight bulkhead, especially for underground waste repositories [Martino et al., 2007].

[62] **Acknowledgments.** We thank Jean-Christophe Sabroux for fruitful discussions and Jérôme Wassermann for initiating air permeability measurements at the Roselend Natural Laboratory. The technical help of Patrick Carrera and Marc Perrier is greatly acknowledged. We thank Bertrand Menotto for the building of the air-tight bulkhead. Thanks go to the city of Beaufort for giving access to the Roselend Natural Laboratory. We thank the editors and the three anonymous reviewers for their comments that greatly improved the manuscript. This is IGP contribution number 3330.

References

- Ahlers, C. F., S. Finsterle, and G. S. Bodvarsson (1999), Characterization and prediction of subsurface pneumatic response at Yucca Mountain, Nevada, *J. Contam. Hydrol.*, **38**(1–3), 47–68.
- Baehr, A. L., and M. F. Hult (1991), Evaluation of unsaturated zone air permeability through pneumatic tests, *Water Resour. Res.*, **27**(10), 2605–2617.
- Berkowitz, B. (2002), Characterizing flow and transport in fractured geological media: A review, *Adv. Water Resour.*, **25**(8–12), 861–884.
- Bogdanov, I., V. V. Mourzenko, J. F. Thovert, and P. M. Adler (2003), Effective permeability of fractured porous media in steady state flow, *Water Resour. Res.*, **39**(1), 1023–1039, doi:10.1029/2001WR000756.
- Bossart, P., P. M. Meier, A. Moeri, T. Trick, and J. C. Mayor (2002), Geological and hydraulic characterisation of the excavation disturbed zone in the Opalinus Clay of the Mont Terri Rock Laboratory, *Eng. Geol.*, **66**(1–2), 19–38.
- Brace, W. F. (1984), Permeability of crystalline rocks—New in situ measurements, *J. Geophys. Res.*, **89**(B6), 4327–4330.
- Clauser, C. (1992), Permeability of crystalline rocks, *EOS*, **73**(21), 233–240.
- Cook, P. J., R. Salve, B. M. Freifeld, and Y. T. Tsang (2003), Measurement system for systematic hydrological characterization of unsaturated fractured welded tuff in a mined underground tunnel, *Ground Water*, **41**(4), 449–457.
- Daily, W., A. Ramirez, D. Labrecque, and J. Nitao (1992), Electrical resistivity tomography of vadose zone water movement, *Water Resour. Res.*, **28**(5), 1429–1442.
- Freifeld, B. M. (2001), Estimation of fracture porosity in an unsaturated fractured welded tuff using gas tracer testing, Ph.D. thesis, Lawrence Berkeley Natl. Lab., Univ. of Calif., Berkeley.
- Guzman, A. G., A. M. Geddis, M. J. Henrich, C. F. Lohrstorfer, and S. P. Neuman (1996), Summary of air permeability data from single-hole injection tests in unsaturated fractured tuffs at the Apache Leap Research Site: Results of steady-state test interpretation, Rep. NUREG/CR-6360, Univ. of Arizona, Tucson, Arizona.
- Hinds, J. J., G. S. Bodvarsson, and G. H. Nieder-Westermann (2003), Conceptual evaluation of the potential role of fractures in unsaturated processes at Yucca Mountain, *J. Contam. Hydrol.*, **62–63**, 111–132.
- Hirt, C. W. (1968), Heuristic stability theory for finite-difference equations, *J. Comput. Phys.*, **2**(4), 339–355.
- Hyun, Y., S. P. Neuman, V. V. Vesselinov, W. A. Illman, D. M. Tartakovsky, and V. Di Federico (2002), Theoretical interpretation of a pronounced permeability scale effect in unsaturated fractured tuff, *Water Resour. Res.*, **38**(6), 1092–1100.
- Illman, W. A. (2004), Analysis of permeability scaling within single boreholes, *Geophys. Res. Lett.*, **31**(5), L06503, doi:10.1029/2003GL019303.
- Illman, W. A. (2005), Type curve analyses of pneumatic single-hole tests in unsaturated fractured tuff: Direct evidence for a porosity scale effect, *Water Resour. Res.*, **41**(4), W0418, doi:10.1029/2004WR003703.
- Illman, W. A. (2006), Strong field evidence of directional permeability scale effect in fractured rock, *J. Hydrol.*, **319**(1–4), 227–236.
- Illman, W. A., and D. L. Hughson (2005), Stochastic simulations of steady state unsaturated flow in a three-layer, heterogeneous, dual continuum model of fractured rock, *J. Hydrol.*, **307**(1–4), 17–37.
- Illman, W. A., and S. P. Neuman (2000), Type-curve interpretation of multirate single-hole pneumatic injection tests in unsaturated fractured rock, *Ground Water*, **38**(6), 899–911.
- Illman, W. A., and S. P. Neuman (2001), Type curve interpretation of a cross-hole pneumatic injection test in unsaturated fractured tuff, *Water Resour. Res.*, **37**(3), 583–603, doi:10.1029/2000WR900273.
- Illman, W. A., and S. P. Neuman (2003), Steady-state analysis of cross-hole pneumatic injection tests in unsaturated fractured tuff, *J. Hydrol.*, **281**(1–2), 36–54.
- Illman, W. A., and D. M. Tartakovsky (2005), Asymptotic analysis of cross-hole pneumatic injection tests in unsaturated fractured tuff, *Adv. Water Resour.*, **28**(11), 1217–1222.
- Jakubick, A. T., and T. Franz (1993), Vacuum testing of the permeability of the excavation damaged zone, *Rock Mech. Rock Eng.*, **26**(2), 165–182.
- Kearl, P. M., R. J. Zinkl, J. J. Dexter, and T. Cronk (1990), Air permeability measurements of the unsaturated Bandelier Tuff near Los-Alamos, New-Mexico, *J. Hydrol.*, **117**(1–4), 225–240.
- Kim, H., Y. Lettry, D. Park, D. Ryu, B. Choi, and W. Song (2012), Field evaluation of permeability of concrete linings and rock masses around underground lined rock caverns by a novel in-situ measurement system, *Eng. Geol.*, **137–138**, 97–106.
- LeCain, G. (1997), Air-injection testing in vertical boreholes in welded and nonwelded tuff, Yucca Mountain, Nevada, Water-Resour. Investig. Rep. 96–4262, U.S. Geol. Surv., Denver, Colorado.
- Long, J. C. S., J. S. Remer, C. R. Wilson, and P. A. Witherspoon (1982), Porous-media equivalents for networks of discontinuous fractures, *Water Resour. Res.*, **18**(3), 645–658.
- Martino, J. B., D. A. Dixon, E. T. Kozak, M. Gascoyne, B. Vignal, Y. Sugita, T. Fujita, and Masumoto, K. (2007), The tunnel sealing experiment: An international study of full-scale seals, *Phys. Chem. Earth*, **32**(1–7), 93–107.
- Mourzenko, V. V., I. Bogdanov, J. F. Thovert, and P. M. Adler (2011), Three-dimensional numerical simulation of single-phase transient compressible flows and well-tests in fractured formations, *Math. Comput. Simul.*, **81**(10), 2270–2281.
- Neeper, D. A. (2002), Investigation of the vadose zone using barometric pressure cycles, *J. Contam. Hydrol.*, **54**(1–2), 59–80.
- Neuman, S. P. (1994), Generalized scaling of permeabilities—Validation and effect of support scale, *Geophysical Res. Lett.*, **21**(5), 349–352.
- Ni, C., and T. J. Yeh (2008), Stochastic inversion of pneumatic cross-hole tests and barometric pressure fluctuations in heterogeneous unsaturated formations, *Adv. Water Resour.*, **31**(12), 1708–1718.
- Oldenburg, C. M., J. L. Lewicki, L. Dobeck, and L. Spangler (2010), Modeling gas transport in the shallow subsurface during the ZERT CO₂ release test, *Transp. Porous Media*, **82**(1), 77–92.
- Patriarche, D., E. Pili, P. Adler, and J.-F. Thovert (2007), Stereological analysis of fractures in the Roselend tunnel and permeability determination, *Water Resour. Res.*, **43**, W09421, doi:10.1029/2006WR005471.
- Peyret, R., and T. D. Taylor (1985), *Computational Methods for Fluid Flow*, Springer, New York.

- Pili, E., F. Perrier, and P. Richon (2004), Dual porosity mechanism for transient groundwater and gas anomalies induced by external forcing, *Earth Planetary Sci. Lett.*, 227(3–4), 473–480.
- Pili, E., S. Bureau, F. Perrier, D. Patriarche, L. Charlet, P. M. Adler, and P. Richon (2008a), Reactive transport and residence times in unsaturated fractured rocks from field-scale experiments, In *Developments in Earth and Environmental Sciences*, volume 7, edited by M. O. Barnett, and D. B. Kent, pp. 441–468, Elsevier Science, Amsterdam.
- Pili, E., P. Richon, M. Moreira, P. Agrinier, J. C. Sabroux, and P. M. Adler (2008b), The ROSELEND-Gas Project: Research on sollicitation effects in a large-scale experiment under natural dynamics with gas, *EOS Trans. AGU*, 89(53), Fall Meet. Suppl., Abstract H53A-1000.
- Richon, P., F. Perrier, J. C. Sabroux, M. Trique, C. Ferry, V. Voisin, and E. Pili (2005), Spatial and time variations of radon-222 concentration in the atmospheres of a dead-end horizontal tunnel, *J. Environ. Radioactiv.*, 78(2), 179–198.
- Sethian, J. A., and P. Smereka (2003), Level set methods for fluid interfaces, *Annu. Rev. Fluid Mech.*, 35, 341–372.
- Sun, Y., and C. R. Carrigan (2012), Modeling noble gas transport and detection for the comprehensive nuclear-test-ban treaty, *Pure Appl. Geophys.*, 1–16.
- Switzer, C., and D. S. Kosson (2007), Evaluation of air permeability in layered unsaturated materials, *J. Contam. Hydrol.*, 90(3–4), 125–145.
- Unger, A., S. Finsterle, and G. Bodvarsson (2004), Transport of radon gas into a tunnel at Yucca Mountain—Estimating large-scale fractured tuff hydraulic properties and implications for the operation of the ventilation system, *J. Contam. Hydrol.*, 70(3–4), 153–171.
- Vesselinov, V. V., and S. P. Neuman (2001), Numerical inverse interpretation of single-hole pneumatic tests in unsaturated fractured tuff, *Ground Water*, 39(5), 685–695.
- Vesselinov, V. V., S. P. Neuman, and W. A. Illman (2001a), Three-dimensional numerical inversion of pneumatic cross-hole tests in unsaturated fractured tuff 1. Methodology and borehole effects, *Water Resour. Res.*, 37(12), 3001–3017.
- Vesselinov, V. V., S. P. Neuman, and W. A. Illman (2001b), Three-dimensional numerical inversion of pneumatic cross-hole tests in unsaturated fractured tuff 2. Equivalent parameters, high-resolution stochastic imaging and scale effects, *Water Resour. Res.*, 37(12), 3019–3041.
- Wang, J. S. Y., R. C. Trautz, P. J. Cook, S. Finsterle, A. L. James, and J. Birkholzer (1999), Field tests and model analyses of seepage into drift, *J. Contam. Hydrol.*, 38(1–3), 323–347.
- Wassermann, J., J. C. Sabroux, S. Pontreau, S. Bondiguel, S. Guillon, P. Richon, and E. Pili (2011), Characterization and monitoring of the excavation damaged zone in fractured gneisses of the Roselend tunnel, *French Alps, Tectonophysics*, 503(1–2), 155–164.
- Zhou, Q. L., H. H. Liu, G. S. Bodvarsson, and C. M. Oldenburg (2003), Flow and transport in unsaturated fractured rock: Effects of multiscale heterogeneity of hydrogeologic properties, *J. Contam. Hydrol.*, 60(1–2), 1–30.

2.2 Inversion des paramètres d'écoulement d'air à partir d'un test d'injection pneumatique dans la chambre

Pour poursuivre les simulations des tests d'injection pneumatique réalisées dans l'article présenté précédemment, j'ai cherché à compléter le modèle en réalisant des simulations diphasiques prenant explicitement en compte l'eau et son écoulement possible. J'ai de plus systématisé la détermination de la perméabilité avec une approche de modèle inverse et une quantification des incertitudes associées.

2.2.1 Modélisation numérique de l'écoulement et du transport des fluides

Les simulations numériques d'écoulement et de transport des fluides en milieux poreux permettent d'interpréter les résultats expérimentaux et de déterminer les valeurs de certains paramètres du milieu pour ensuite effectuer des calculs prédictifs de migration dans d'autres contextes hydrogéologiques. Différents codes peuvent être utilisés dans ce but, en particulier TOUGH2 (Pruess *et al.*, 1999), FEHM (Zyvoloski *et al.*, 2008), OpenGeoSys (Xu *et al.*, 2013) et NUFT (Nitao, 1998). Les résultats présentés dans cette thèse ont été obtenus avec le code NUFT (Non-isothermal Unsaturated Flow and Transport Nitao et Sun, 2011; Nitao, 1998, 2001), dans le cadre d'une collaboration entre le CEA et le Lawrence Livermore National Laboratory (LLNL), qui développe ce code. Ce code a été choisi car c'est actuellement l'un des seuls à être utilisés pour l'étude de la migration des gaz après une explosion nucléaire souterraine.

Jusqu'à présent, le code NUFT a été utilisé pour l'étude de contaminations de subsurface (Carrigan et Nitao, 2000), pour l'évaluation du stockage des déchets nucléaires à Yucca Mountain (Nevada, États-Unis) (Sun *et al.*, 2010), du stockage de CO_2 (Sun *et al.*, 2013) et pour la détection des essais nucléaires souterrains par les gaz radioactifs (Carrigan *et al.*, 1996; Carrigan et Sun, 2012; Sun et Carrigan, 2012). NUFT permet également de modéliser le transport réactif, avec des réactions chimiques en phase aqueuse, ou avec des désintégrations radioactives avec différents types d'embranchements (Sun *et al.*, 2011).

Pendant cette thèse, j'ai utilisé le code NUFT pour réaliser d'une part des simulations de tests d'injection pneumatique et de diffusion des fluctuations de pression atmosphérique, dont les résultats sont présentés dans ce chapitre, et d'autre part pour réaliser des simulations de migration des gaz traceurs, dont les résultats seront présentés au Chapitre 4.

Les simulations numériques sont effectuées dans un système isotherme diphasique (liquide-gaz), multi-composants (eau-air-traceurs). NUFT résout l'équation du bilan de matière (Équation 1.13). Les équations différentielles sont discrétisées dans l'espace selon une méthode de différences finies intégrées (ou volumes finis). Un schéma du premier ordre implicite en temps est utilisé pour la discrétisation temporelle. La méthode de Newton-Raphson et la méthode d'élimination de Gauss permettent ensuite de résoudre les équations non-linéaires du bilan de masse à chaque pas de temps.

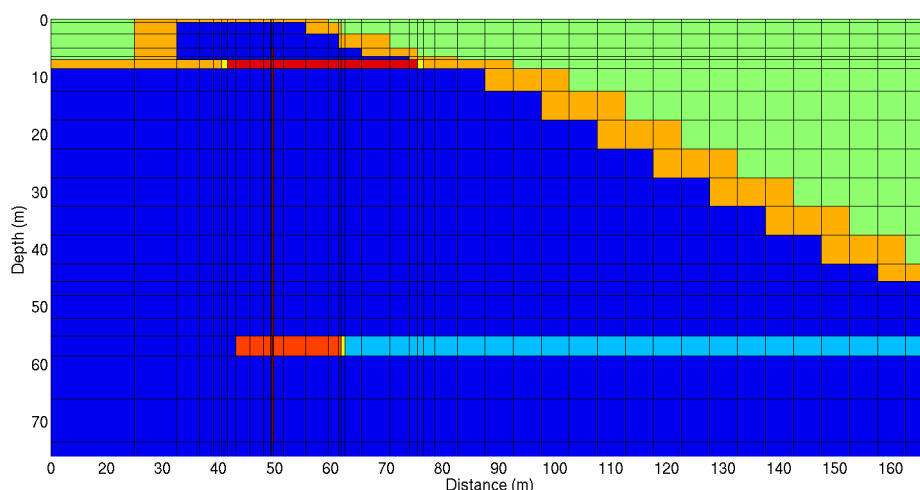


FIGURE 2.1 – Coupe verticale du maillage 3D utilisé pour les simulations avec NUFT, dans le plan passant par l’axe du tunnel. Le milieu étant symétrique par rapport à ce plan vertical, seul un demi-espace est modélisé. Dans la 3^{ème} dimension, le maillage s’étend sur 50 m.

FIGURE 2.1 – Vertical cross-section of the 3D mesh used in NUFT simulations. The vertical cross-section cuts the tunnel along its axis. Because of the symmetry of the system with respect to this vertical plane, a single half-space is modeled. The mesh extends over 50 m in the third direction.

Pour représenter le Laboratoire Naturel de Roselend, un maillage 3D a été construit. La Figure 2.1 représente la discrétisation de la topographie de la surface, du tunnel, du mur isolant la chambre d’injection C, du forage d’observation SCH1 (et des 2 obturateurs qui l’isolent de l’atmosphère). La base du modèle représente la nappe, considérée à une distance fixe de 20 m sous le tunnel. Une zone de fracture discrète verticale, reliant la chambre d’injection au forage d’observation, a été intégrée dans le maillage, pour représenter un réseau de fractures percolant, qui est mis en évidence par les traçages (hydrogéologiques, Pili *et al.*, 2008a, ou avec des gaz, cette étude). La symétrie du système par rapport au plan vertical passant par l’axe du tunnel est utilisée pour limiter la taille du maillage. Un seul demi-espace est ainsi considéré. Les tailles des mailles (de 0,05 à 30 m) ont été choisies pour pouvoir représenter les différentes structures, tout en évitant les variations trop fortes de largeur de maille, et en limitant le nombre total d’éléments. Les éléments en dehors du massif rocheux, représentés en vert sur la Figure 1, ne sont pas considérés dans les calculs. Le maillage 3D retenu s’étend verticalement sur 75 m de la surface à la nappe, 168 m dans l’axe du tunnel, et 50 m perpendiculairement au tunnel, et comporte 10 068 éléments.

Dans ce chapitre, des simulations d’écoulement de fluides, sans traceurs, sont présentées. Dans un premier temps, un milieu poreux équivalent est utilisé pour représenter les roches poreuses fracturées du Laboratoire Naturel de Roselend. Dans ce chapitre, le maillage utilisé ne présente pas de fracture discrète verticale entre la chambre C et le forage d’observation. Comme expliqué dans Guillon *et al.* (2013) (Section 2.1.1), cette approximation est justifiée car le système étudié est de grande dimension par rapport

à l'espacement moyen entre les fractures (Long *et al.*, 1982), estimé d'après les relevés obtenus le long du tunnel (0,3 fracture par mètre Patriarche *et al.*, 2007). Des études expérimentales et numériques ont par ailleurs montré que le modèle poreux équivalent permet bien de représenter l'écoulement et le transport en milieu fracturé (Liu *et al.*, 2003; Svensson, 2001).

A terme, un modèle de double perméabilité sera utilisé. Le modèle classique de double perméabilité a été développé dans les années 60 pour représenter les milieux poreux fracturés (Barenblatt et Zheltov, 1960; Nilson et Lie, 1990; Doughty, 1999). Ce modèle considère l'advection et la diffusion des fluides à la fois dans la matrice à faible perméabilité et dans le réseau interconnecté des fractures. Chaque milieu, matrice et réseau de fractures, est décrit comme un milieu poreux équivalent. Le modèle considère aussi un terme d'échange entre les deux continuum, proportionnel au gradient de pression. La Figure 2.2 schématise le principe du modèle de double perméabilité.

Dans certains cas, les modèles de milieu poreux équivalent mais surtout de fractures discrètes semblent apporter de meilleurs résultats que les modèles de double perméabilité (Blessent *et al.*, 2013; Evans, 2001). Une comparaison systématique des performances de ces trois types de modèles pour l'interprétation des résultats obtenus au Laboratoire Naturel de Roselend serait à réaliser.

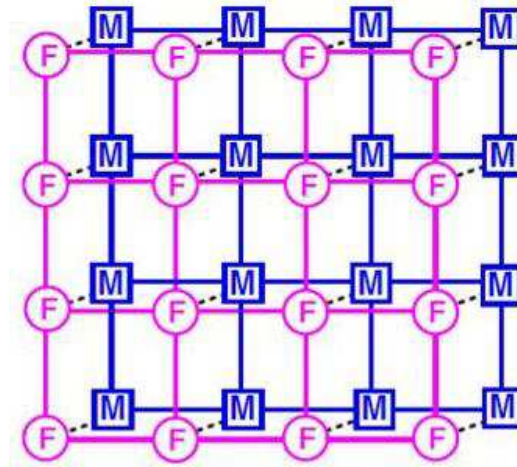


FIGURE 2.2 – Représentation du modèle de double perméabilité. Chaque cellule du maillage est constituée d'un élément représentant le réseau de fractures (F), et d'un élément représentant la matrice (M). L'écoulement se fait à la fois au sein du continuum des fractures et de celui de la matrice. Un écoulement F-M a en plus lieu entre les deux continuum. D'après Pruess *et al.* (1999).

FIGURE 2.2 – Representation of the double permeability model. Each cell of the mesh is composed of one sub-cell for the fracture network (F), and one sub-cell for the matrix (M). Flow occurs through both fracture and matrix continua. An additional F-M flow occurs between the two continua. From Pruess *et al.* (1999).

2.2.2 Simulations numériques des tests d'injection pneumatique dans la chambre C

J'ai utilisé NUFT pour calculer numériquement les écoulements de fluides lors du test d'injection pneumatique réalisé le 21/09/2011 dans la chambre C, comme cela avait été fait avec le code de Vu (2012) dans Guillon *et al.* (2013). Le test d'injection pneumatique, dont les résultats expérimentaux sont présentés en Figure 2.3, consiste en deux parties : une injection d'air avec un débit constant de 24 L/min dans la chambre, qui maintient pendant 40 h une pression constante de 1060 mbar dans la chambre, soit une surpression de 210 mbar ; puis un arrêt de l'injection d'air, qui entraîne la décroissance de la pression dans la chambre pendant plus de 70 heures pour atteindre 850 mbar, la pression atmosphérique.

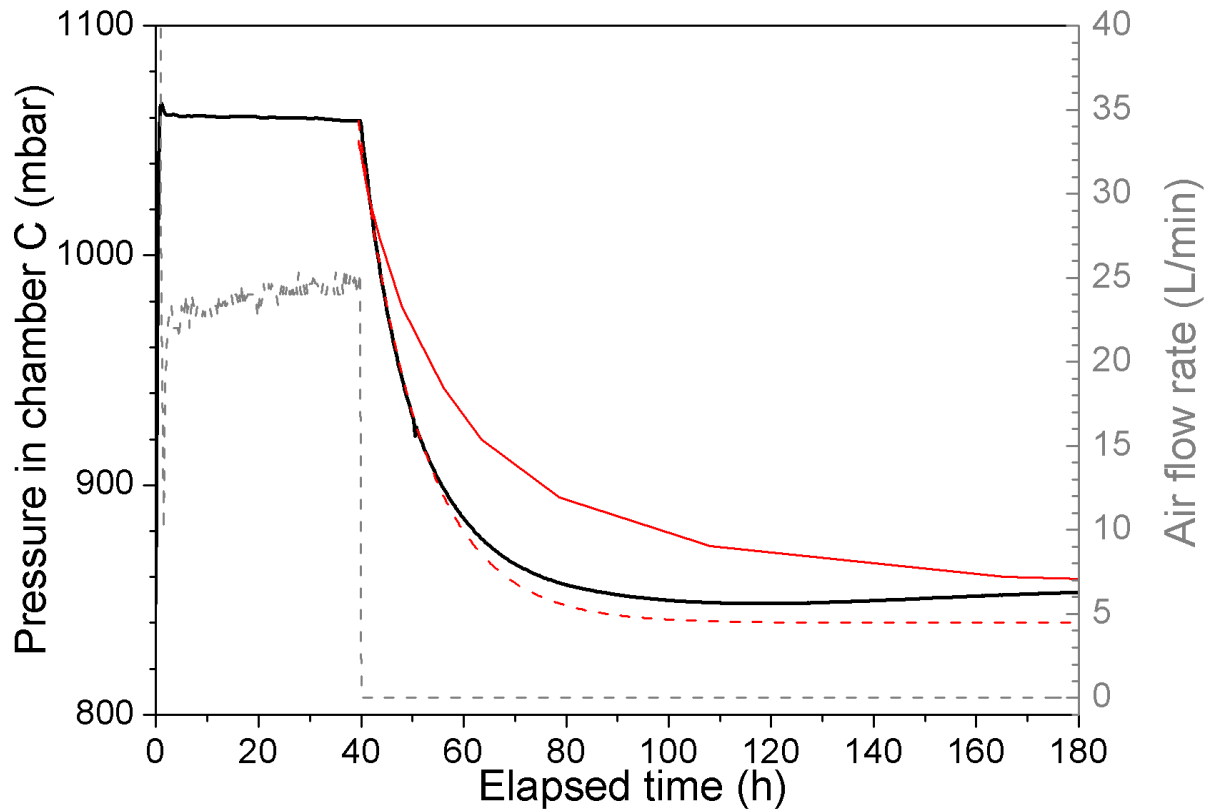


FIGURE 2.3 – Pression (en noir) et débit d'injection (pointillés gris) mesurés dans la chambre C lors du test d'injection pneumatique du 21/09/2011. La décroissance de la pression calculée avec NUFT pour une perméabilité de $7,3 \cdot 10^{-15} \text{ m}^2$ est indiquée par la courbe rouge. La courbe pointillée rouge représente la décroissance de la pression dans un modèle analytique 1D (cf. Section 2.2.4).

FIGURE 2.3 – Pressure (black line) and injection flow rate (dashed grey line) measured in chamber C during pneumatic injection test on 9/21/2011. Pressure decrease calculated with NUFT for a permeability of $7.3 \cdot 10^{-15} \text{ m}^2$ is shown by the red line. The dashed red line corresponds to the 1D analytical solution (see Section 2.2.4).

Dans un premier temps, un modèle équivalent à simple porosité est utilisé pour représenter les roches cristallines fracturées du Laboratoire Naturel de Roselend. Contrai-

TABLEAU 2.1 – Gamme de variation des paramètres et coefficients de sensibilité totale calculés pour chacune des variables de sortie.

TABLE 2.1 – Range of the input parameters and total sensitivity coefficients calculated for each of the output variables.

	Equivalent permeability k (m ²)	Porosity ϵ (%)	Initial saturation S ₀ (%)	Residual saturation S _r (%)	Van Gen. parameter m (-)	Air entry pressure α (Pa ⁻¹)
Range of variation for input parameters						
Min	10 ⁻¹⁷	0.1	10	0.5	0.1	10 ⁻⁶
Max	10 ⁻¹²	8	90	10	0.8	10 ⁻³
Total sensitivity for the initial model *						
Pore pressure **	0.91	0.22	0	0	0.21	0.15
Water saturation **	0.14	0.01	0	0.001	0.45	0.47
Total sensitivity for air injection *						
Pressure in chamber	0.96	0.001	0	0	0.09	0.07
Pressure in SCH1	0.82	0.31	0.08	0	0.26	0.35
Total sensitivity for pressure decrease *						
Objective function f ₁	0.97	0.002	0	0	0.09	0.08

* significative sensibility coefficients are in bold

** at 40 m depth

rement aux simulations réalisées dans Guillon *et al.* (2013), l'écoulement des deux phases eau et air est ici simulé. Pour commencer, un modèle dit initial doit être réalisé. Pour des conditions aux limites fixées de pression atmosphérique et de position de la nappe, l'évolution de la pression et de la saturation du milieu au bout de 1 million d'années est calculée, afin d'obtenir les profils de pression et de saturation à l'état stationnaire, à l'équilibre avec les paramètres choisis pour le milieu.

Les valeurs de pression et de saturation de chaque cellule du modèle sont ensuite prises comme conditions initiales pour le modèle d'injection d'air. Une source constante d'air est imposée dans la chambre C, qui correspond à 24 L/min, le débit d'injection mesuré lors de l'expérience (cf. Figure 2.3). Même si les injections d'air réalisées dans la chambre C ont duré entre 20 et 250 h, la durée de la simulation choisie est de 1 an, pour s'assurer que l'état stationnaire est bien atteint dans la simulation, et pour pouvoir observer d'éventuels mouvements d'eau.

De la même manière, les valeurs de pression et de saturation de chaque cellule à la fin de la simulation d'injection d'air sont prises comme conditions initiales pour le modèle de décroissance de pression. Les mêmes conditions aux limites de pression atmosphérique et de position de la nappe sont conservées, et la source d'air est enlevée. La décroissance observée dure une centaine d'heures, mais la simulation dure 1 an pour être sûr de l'avoir en totalité, quels que soient les paramètres.

2.2.3 Analyse de sensibilité et quantification des incertitudes

PSUADE (Problem Solving Environment for Uncertainty Analysis and Design Exploration) est un logiciel libre développé au Lawrence Livermore National Laboratory et dédié à la quantification des incertitudes, à l'analyse de sensibilité et à l'optimisation numérique (Tong, 2012). Dans un premier temps, PSUADE est ici utilisé pour échantillonner l'espace des paramètres de façon aléatoire et produire un grand nombre N de jeux de paramètres, typiquement de l'ordre de 1 000. Dans un deuxième temps, NUFT est utilisé pour réaliser N simulations avec les N jeux de paramètres en entrée. Pour chaque simulation, un certain nombre de variables d'intérêt, ou variables de sortie, est défini qui peuvent être des observables, des volumes contaminés, des temps de percée... Ces variables de sortie permettent une analyse statistique quantitative des résultats. Dans un troisième temps, PSUADE est de nouveau utilisé pour l'analyse statistique des relations entre paramètres d'entrée et variables de sortie. En particulier, PSUADE permet de :

- quantifier la sensibilité des variables de sortie aux différents paramètres d'entrée, pour déterminer quels sont les paramètres influents, qu'il va falloir connaître et considérer comme sources d'incertitudes, et les paramètres non influents, sur lesquels il ne sert à rien de passer trop de temps ;
- établir une relation analytique entre les paramètres d'entrée et les variables de sortie, en vérifiant qu'elle reproduit bien les résultats. On parle de surface de réponse, de modèle de substitution, ou d'émulation. A partir d'un nombre discret de simulations réalisées, on obtient ainsi une loi continue, qui pourra ensuite être utilisée entre autres pour des calculs d'incertitude ;
- calibrer le modèle, en obtenant par optimisation, déterministe ou bayésienne (Tarantola, 2005), les valeurs des paramètres influents à partir de données expérimentales ;
- quantifier l'incertitude sur les paramètres obtenus par inversion et sur les variables de sortie.

J'ai ici choisi d'explorer l'espace pour 7 paramètres initiaux (6 propriétés constitutives du milieu et une condition initiale), dont les valeurs ne sont pas connues et qui pourraient avoir une influence sur les résultats des tests d'injection pneumatique. Ces paramètres, ainsi que les gammes de variation choisies, sont indiqués dans le Tableau 2.1. Chaque paramètre a une probabilité uniforme de varier dans l'intervalle considéré. Avec PSUADE, un échantillonnage aléatoire de 1 000 jeux de ces 7 paramètres est réalisé selon la méthode d'échantillonnage latin hypercube (McKay *et al.*, 2000). La Figure 2.4 présente l'échantillonnage de 4 des paramètres. Les 1000 simulations correspondantes sont ensuite réalisées avec NUFT, pour les modèle initial, d'injection et de décroissance. Certaines combinaisons de paramètres n'ayant pas de signification physique, une centaine de simulations n'aboutissent pas (Figure 2.4).

2.2.3.1 Sensibilité aux paramètres

Pour chaque étape de modélisation, une analyse de sensibilité est réalisée. Le coefficient de sensibilité totale S_{Tk} de la variable de sortie Y au paramètre d'entrée X_k , compris entre 0 et 1, quantifie la proportion de la variance de Y qui est causée par le paramètre X_k et par ses interactions avec les autres paramètres $X_{\neq k}$. Les coefficients

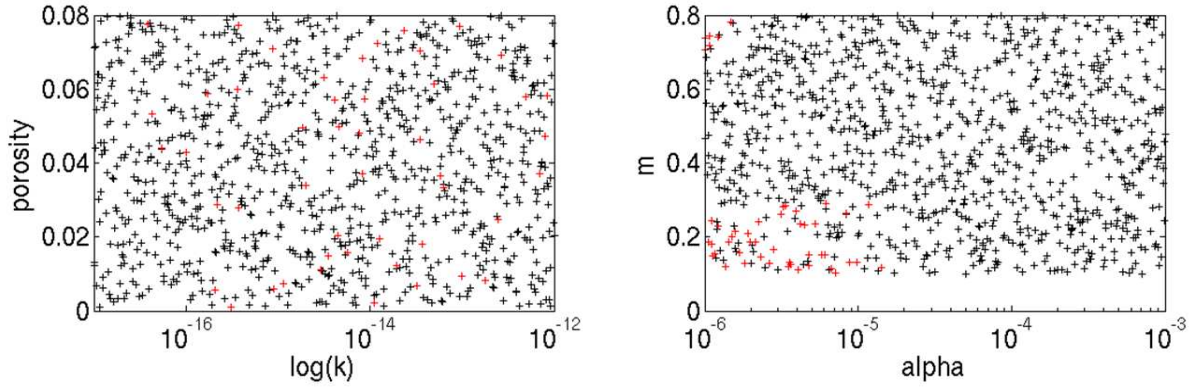


FIGURE 2.4 – Représentation des 1 000 simulations numériques de tests d’injection pneumatique réalisées avec NUFT. Chaque point correspond à un jeu de 7 paramètres, mais seuls 4 paramètres sont ici figurés : la porosité, la perméabilité, la pression d’entrée d’air (alpha) et le paramètre de Van Genuchten (m). Les 3 autres paramètres varient dans les gammes définies dans le Tableau 2.1. Les points rouges correspondent aux jeux de paramètres pour lesquelles les simulations n’ont pas abouti.

FIGURE 2.4 – Scatter plot of the 1000 numerical simulations of pneumatic injection tests done with NUFT. Each point corresponds to a set of 7 input parameters, but only 4 parameters are represented here : porosity, permeability, air entry pressure (alpha) and Van Genuchten parameter (m). The other parameters vary in the ranges indicated in Table 2.1. Red dots correspond to parameter sets for which simulations did not succeed.

de sensibilité totale sont déterminés par PSUADE selon la méthode de Sobol (Sobol, 1993; Saltelli *et al.*, 1999). Pour améliorer l’analyse statistique, tous les paramètres sont normalisés pour les ramener dans l’intervalle [0,1]. Pour le modèle initial, la pression et la saturation dans la roche au bout d’un million d’années ont été choisies comme variables de sortie. Pour l’injection d’air à l’état stationnaire, il s’agit de la pression dans la chambre et de celle dans le forage d’observation SCH1 au bout d’un an. Enfin, pour la décroissance de pression, on s’intéresse à une fonction objectif qui quantifie l’adéquation du modèle aux données, et qui est définie ci-après.

Les résultats des analyses de sensibilité globale sont récapitulés dans le Tableau 2.1. Dans un milieu non perturbé (modèle initial), la pression est essentiellement contrôlée par la perméabilité et un peu par la porosité, alors que le profil de saturation en eau est contrôlé par les paramètres de Van Genuchten α et m . La saturation initiale de la roche n’a aucun rôle, l’état final du système étant contrôlé par ses propriétés intrinsèques. Les valeurs des paramètres de Van Genuchten sont difficile à mesurer dans les roches cristallines fracturées (Gimmi *et al.*, 1997), et elles ne sont pas connues pour les roches du Laboratoire Naturel de Roselend. La méthode d’inversion présentée ci-après pourra à l’avenir être utilisée pour déterminer les valeurs de ces paramètres. Il faudrait pour cela effectuer des mesures de saturation de la roche. Pour le moment, ces paramètres sont considérés comme inconnus. Les gammes de variations choisies, indiquées dans le Tableau 2.1, sont tirées de la littérature pour des études expérimentales dans des roches fracturées (Gimmi *et al.*, 1997; Ahlers et Liu, 2001).

Lors d’une injection d’air à débit constant, la pression à l’état stationnaire dans la chambre d’injection dépend fortement et uniquement de la perméabilité de la roche,

alors que la pression dans le forage d'observation, à 50 m de la source d'air injecté, dépend de plusieurs paramètres. La mesure de pression et de débit lors d'une injection d'air à débit constant dans un intervalle isolé (chambre C ou forage obturé) est donc une méthode adaptée pour déterminer la perméabilité intrinsèque de la roche. Elle ne permet en revanche pas de déterminer d'autre paramètre.

La décroissance de pression suite à l'arrêt de l'injection d'air est également sensible à la perméabilité, mais aussi au rapport de la perméabilité à la porosité, qui correspond à la diffusivité pneumatique (coefficient de sensibilité totale de 0,13). Non seulement la valeur de la perméabilité mais également celle de la porosité pourront ainsi être déterminées. Ce résultats est connu, et l'évolution temporelle du rabattement de la nappe lors d'un pompage d'essai en zone saturée est utilisée pour estimée le coefficient d'emmagasinement de l'aquifère, qui correspond à sa porosité dans la cas d'un aquifère libre (Burbey *et al.*, 2012).

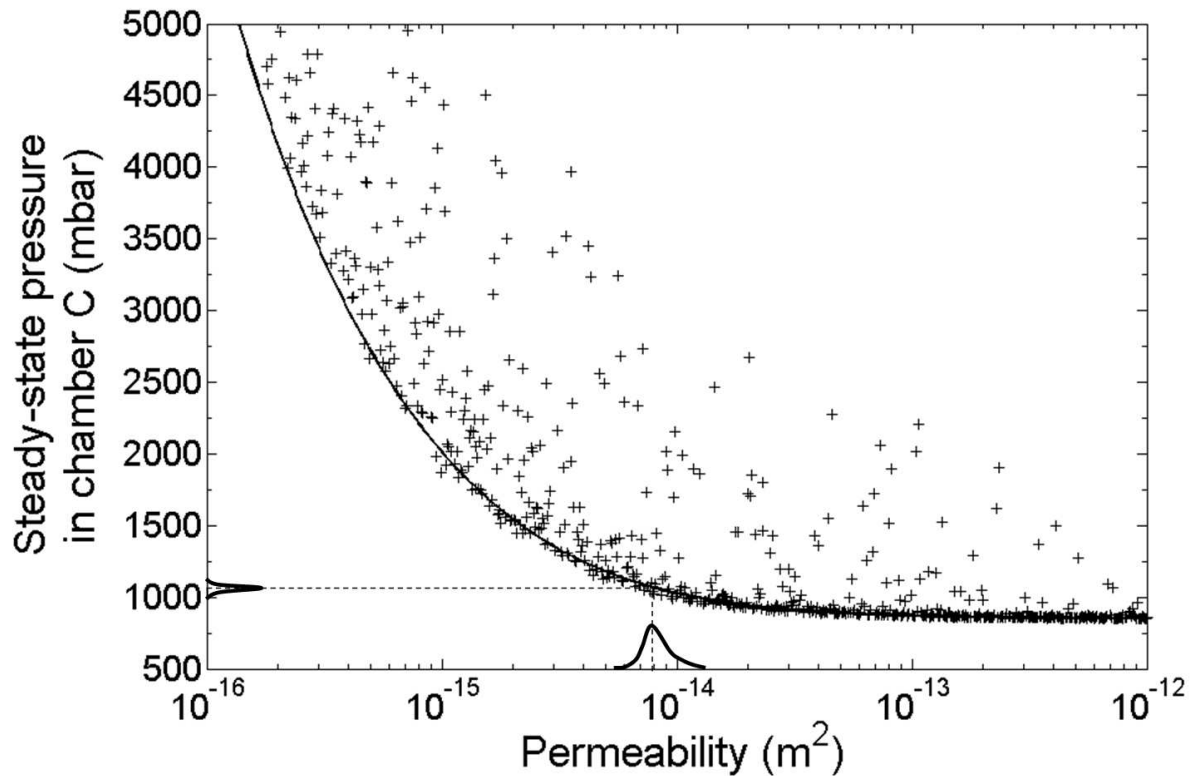


FIGURE 2.5 – Pression à l'état stationnaire dans la chambre obtenue pour les simulations d'injection d'air avec NUFT, en fonction de la valeur de la perméabilité utilisée dans le modèle. La courbe noire indique la relation analytique dans le cas 1D radial (cf Équation 2.4). La densité de probabilité de la pression mesurée dans la chambre et celle obtenue par inversion pour la perméabilité sont représentées sur les axes en unités arbitraires.

FIGURE 2.5 – Scatter plot of the steady-state pressure in the chamber obtained with NUFT for pneumatic injection tests, as a function of the permeability used in the model. The black line indicates the analytical solution for a 1D radial model (see Equation 2.4). Probability density functions for pressure measured in the chamber and for permeability obtained by inverse modeling are shown on the axes in arbitray units.

2.2.3.2 Inversion de la perméabilité et estimation de l'incertitude

Modèle d'injection d'air En accord avec le fort coefficient de sensibilité trouvé précédemment, on observe sur la Figure 2.5 une forte corrélation entre la pression à l'état stationnaire dans la chambre C et la valeur de la perméabilité. A partir de la valeur de la pression mesurée dans la chambre, on peut ainsi déduire la valeur de la perméabilité de la roche. Afin d'estimer l'incertitude sur la valeur de perméabilité ainsi obtenue, j'ai utilisé l'approche proposée par Tarantola (2005) pour résoudre un problème inverse en combinant les incertitudes *a priori*, expérimentales et théoriques. Dans l'hypothèse où les incertitudes liées au modèle sont négligeables devant les incertitudes sur la mesure de la pression dans la chambre, la densité de probabilité *a posteriori* de la perméabilité est alors donnée par :

$$\sigma_K(k) = \frac{1}{\nu} \rho_K(k) \rho_D(g(k)) \quad (2.1)$$

où ν est une constante de normalisation, $\rho_K(k)$ la densité de probabilité *a priori* pour la perméabilité k , $\rho_D(P)$ la densité de probabilité pour la pression observée expérimentalement, et $g(k)$ représente le modèle théorique donnant la pression en fonction de la perméabilité.

Ici, on n'a pas d'information *a priori* sur la perméabilité, et $\rho_K(k)$ est uniforme. La densité de probabilité pour la pression mesurée à l'état stationnaire dans la chambre est supposée gaussienne, avec une moyenne $\bar{P} = 1060$ mbar, et un écart-type $\sigma_P = 10$ mbar. La relation théorique $g(k)$ peut être obtenue analytiquement (généralement dans le cas d'un modèle 1D), ou en utilisant PSUADE. Un polynôme d'ordre 4 permet de reproduire les résultats des 1 000 simulations du modèle d'injection, avec un coefficient $R^2 > 0,98$. La densité de probabilité obtenue pour la perméabilité est représentée en Figure 2.5. Elle n'est pas gaussienne. Le maximum de la densité de probabilité est obtenu pour une perméabilité $k = 8,3 \cdot 10^{-15}$ m², et avec une incertitude $\sigma_k = 1 \cdot 10^{-15}$ m².

Modèle de décroissance de la pression De la même manière que précédemment, on cherche ici à trouver le jeu de paramètres qui permet de reproduire au mieux les données de décroissance de la pression dans la chambre C. Dans ce cas transitoire, il faut minimiser l'écart entre deux courbes dépendantes du temps. Pour cela, une fonction objectif f_1 est utilisée, qui quantifie l'écart entre les résultats du modèle et les données. La fonction objectif est définie sur un critère de moindre carrés, plus robuste que la valeur absolue, d'après Tarantola (2005) :

$$f_1 = \sum_{i=1}^n \frac{1}{2} \left(\frac{P_i - P_i^*}{\sigma} \right)^2 \quad (2.2)$$

où P_i (resp. P_i^*) est la pression calculée par le modèle (resp. mesurée dans la chambre) au temps i , et $\sigma = 1$ mbar est l'incertitude expérimentale sur la mesure de la pression P_i^* . La Figure 2.6 présente l'évolution de cette fonction objectif en fonction de la perméabilité de la roche, avec un minimum bien défini qui permet de déterminer la valeur de la perméabilité. Les résultats sont identiques pour l'évolution de la fonction objectif en fonction de la diffusivité pneumatique, c'est-à-dire au rapport de la perméabilité et de la porosité.

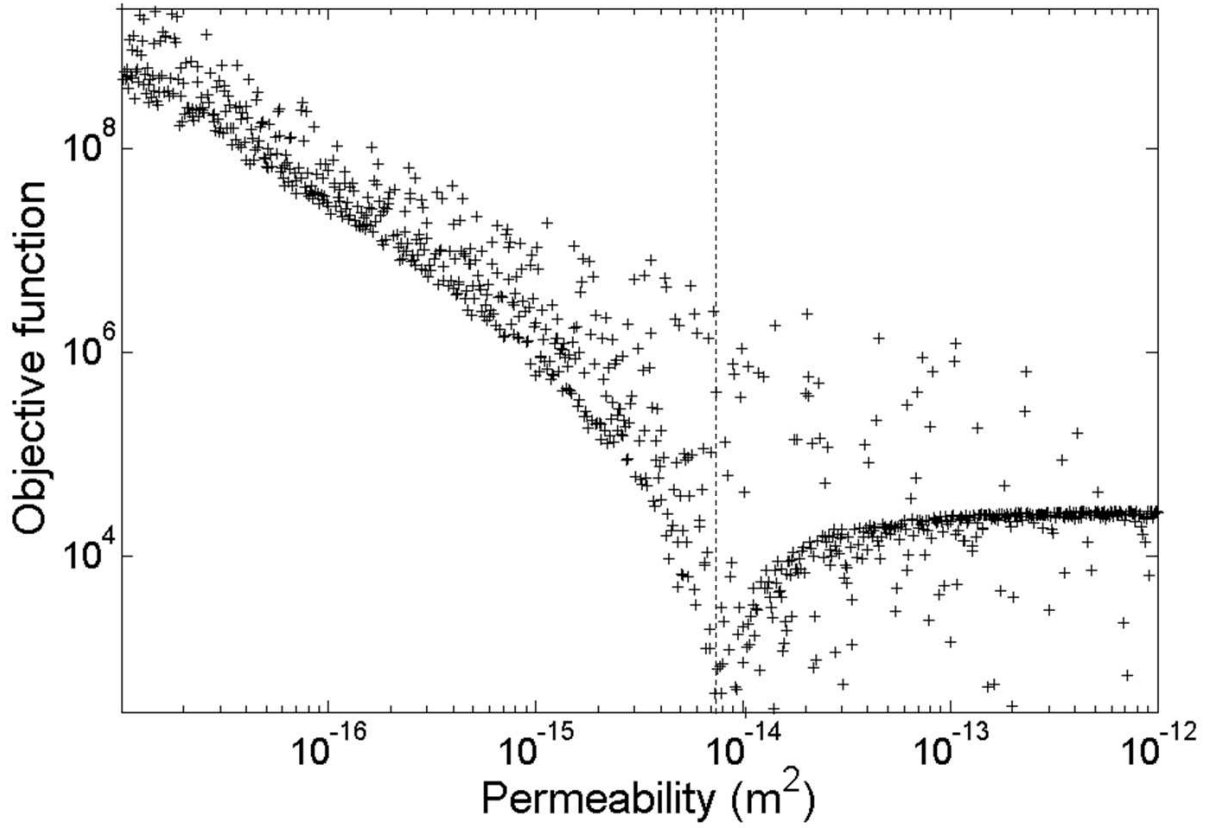


FIGURE 2.6 – Évolution de la fonction objectif f_1 , calculée selon l'Équation 2.2, en fonction de la perméabilité. Le nuage des points correspond à toutes les simulations réalisées avec NUFT pour la décroissance de la pression dans la chambre.

FIGURE 2.6 – Scatter plot of the objective function f_1 , calculated from Equation 2.2, as a function of the permeability. Each dot corresponds to a NUFT simulation of pressure decrease in the chamber.

D'après Tarantola (2005), la densité de probabilité *a posteriori* est obtenue à partir de la fonction objectif par :

$$\sigma_K(k) = \exp(-C \cdot f_1(k)) \quad (2.3)$$

où C est une constante de normalisation. La densité de probabilité *a posteriori* pour la perméabilité est représentée en Figure 2.7. Elle est au premier ordre approchée par une loi log-normale, et donne une perméabilité de $9,5 \cdot 10^{-15} \text{ m}^2$ avec un intervalle de confiance à 68 % entre $5,6 \cdot 10^{-15}$ et $16 \cdot 10^{-15} \text{ m}^2$.

L'étude de sensibilité indique que la fonction objectif définie dans l'Équation 2.2 est sensible non seulement à la perméabilité, mais également à la diffusivité pneumatique. La même méthode est donc utilisée pour déterminer la valeur de la diffusivité pneumatique : $4,0 \pm 1,1 \cdot 10^{-4} \text{ m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$. A partir des valeurs de la diffusivité pneumatique et de la perméabilité, une valeur de la porosité de $4,3 \pm 2,3 \%$ est ainsi obtenue. A partir de ces valeurs de perméabilité et de porosité obtenues par inversion, la courbe d'évolution de la pression après l'arrêt de l'injection d'air est calculée avec le code NUFT. Cette courbe est reproduite dans la Figure 2.3. On note un fort écart entre cette courbe modélisée et les mesures. Si l'on exclut les erreurs liées à la minimisation de la fonction objectif, cet

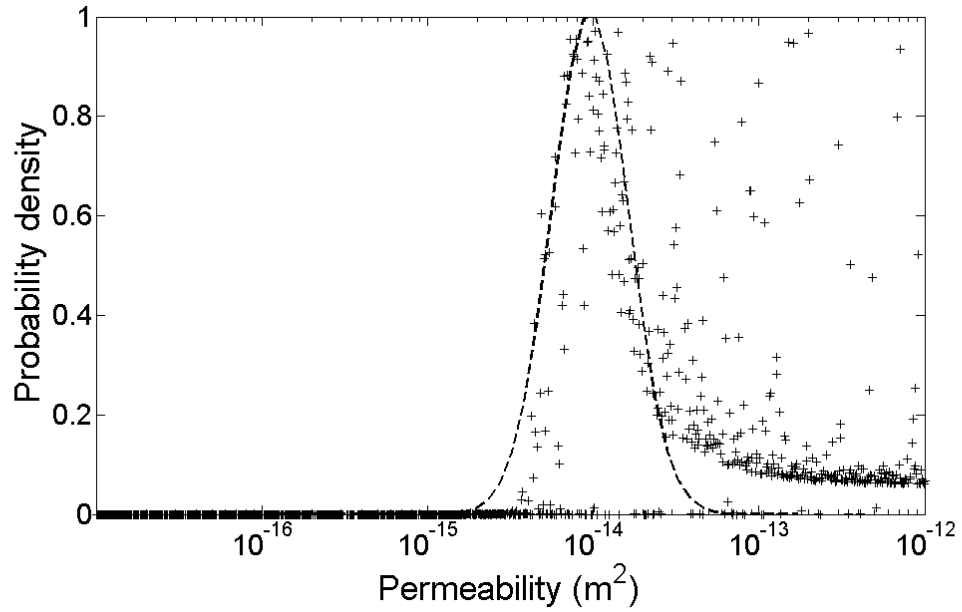


FIGURE 2.7 – Densité de probabilité *a posteriori* pour la perméabilité. Le nuage de points est obtenu à partir de la fonction objectif f_1 et d'après l'Équation 2.3. La courbe tiretée noire représente une densité de probabilité log-normale, de moyenne $9,5 \cdot 10^{-15} \text{ m}^2$ et un intervalle de confiance à 68 % entre $5,6 \cdot 10^{-15}$ et $16 \cdot 10^{-15} \text{ m}^2$.

FIGURE 2.7 – A *a posteriori* probability density function for permeability, obtained from the objective function f_1 and with Equation 2.3. The dashed black line represents a log-normal probability, with a mean of $9.5 \cdot 10^{-15} \text{ m}^2$ and a 68 % confidence interval between $5.6 \cdot 10^{-15}$ and $16 \cdot 10^{-15} \text{ m}^2$.

écart pourrait résulter d'une mauvaise prise en compte des mouvements d'eau autour de la chambre d'injection. En effet, les modèles ne prenant en compte que l'air, 3D dans Guillon *et al.* (2013) ou 1D dans la section suivante, reproduisent mieux les données que le modèle diphasique utilisé dans cette section.

L'analyse de la phase transitoire permet de déterminer à la fois la valeur de la perméabilité et de la porosité, mais avec des incertitudes importantes, alors que l'analyse de la phase stationnaire permet de déterminer plus précisément la valeur de la perméabilité. Il est donc important de combiner l'analyse des deux phases.

Les valeurs de perméabilité intrinsèque et de porosité obtenues ici sont très proches de la perméabilité et de la porosité à l'air calculées avec un modèle monophasique dans Guillon *et al.* (2013). Ceci indique que le milieu était entièrement désaturé lors de l'injection d'air. Il apparaît ainsi que seules les fractures sont sollicitées lors d'un test d'injection pneumatique, et se désaturent facilement. L'eau matricielle reste immobile et n'a pas d'influence.

Pour finir, l'approche utilisée ici avec PSUADE pour l'inversion de paramètres par optimisation peut être mise en perspective. Les méthodes de modèle inverse proposent souvent de partir d'un jeu de paramètres choisi au hasard, et de chercher à trouver celui qui optimise la fonction objectif en utilisant un algorithme de recherche de type gradient, recuit simulé, réseau de neurones ou autre (Vrugt *et al.*, 2008). Si la fonction

objectif est fortement non linéaire, l'algorithme peut rester bloqué dans un minimum relatif et donc rater le minimum absolu. PSUADE utilise une approche plus générale, en cherchant à déterminer en détails la fonction objectif. Si les intervalles de variation des paramètres ont été judicieusement choisis, les optimum relatifs pourront être distingués de l'optimum absolu. On pourra également déterminer une surface de réponse qui sera utilisée pour différentes quantifications.

Cette approche d'inversion des paramètres est basée sur la réalisation de très nombreuses simulations, pour décrire la surface de réponse ainsi que la dispersion liée aux incertitudes sur certains paramètres. Elle est très consommatrice en temps de calcul. Les simulations étant indépendantes, elles peuvent cependant être réalisées simultanément sur plusieurs processeurs, ce qui permet de réduire considérablement le temps de calcul. Même si les résultats obtenus dans cette section avec cette approche n'ont pas permis de reproduire fidèlement les données, l'approche proposée par PSUADE a été utilisée pour calibrer des modèles de transport réactif dans différents contextes (Sun *et al.*, 2011, 2013). Elle apporte une quantification des incertitudes, et mérite d'être considérée plus souvent en hydrogéologie.

2.2.4 Validation du modèle numérique à l'aide d'une solution analytique

La géométrie de la chambre C correspond en bonne approximation à une géométrie 1D radiale. L'Annexe B détaille la résolution des équations différentielles et l'obtention des solutions analytiques pour l'injection pneumatique dans une telle géométrie. Comme obtenu dans l'Annexe B, il existe à l'état stationnaire une relation analytique simple entre la pression P , le débit d'injection d'air q_{ss} et la perméabilité k :

$$P = \sqrt{P_0^2 + \frac{1}{k} \frac{\mu q_{ss} P_0}{\pi L} \ln \left(\frac{R_e}{R} \right)} \quad (2.4)$$

où P_0 est la pression atmosphérique, L la longueur de la chambre, R le rayon de la chambre et R_e le rayon d'influence. Comme expliqué dans Guillon *et al.* (2013), le rayon d'influence est supposé égal à L , soit 20 m dans le cas de la chambre. Dans Guillon *et al.* (2013), on a montré que les résultats obtenus dans cette approximation sont très proches de ceux obtenus par la simulation numérique en considérant la géométrie 3D réelle. Ici, j'ai voulu valider de la même manière les résultats obtenus en géométrie 3D réelle avec NUFT et PSUADE en les comparant aux solutions analytiques obtenues dans le cas 1D. Alors que les simulations avec NUFT sont en conditions diphasiques, le modèle 1D considère un écoulement monophasique, en supposant que l'eau est immobile. Cette approximation est justifiée, comme le montre la Section 2.2.5.

L'Équation 2.4 montre que la pression à l'état stationnaire dans la chambre ne dépend que d'un seul des paramètres du milieu, la perméabilité à l'air, comme on l'a vu également avec l'analyse de sensibilité (Tableau 2.1). Sur la Figure 2.5, le modèle 1D de l'Equation 2.4 est en très bon accord avec l'ensemble des résultats des simulations 3D. La perméabilité à l'air obtenue dans l'approximation 1D monophasique est ainsi quasiment égale à celle obtenue pour un modèle 3D diphasique avec NUFT pour les injections d'air dans la chambre C.

Pour décrire l'évolution transitoire de la pression après l'arrêt de l'injection, il n'y a pas de solution explicite en géométrie 1D radiale. La solution analytique est obtenue pour un écoulement 1D vertical entre la chambre et la surface. La relation obtenue est présentée dans l'Annexe B. La décroissance de la pression dans la chambre dépend du rapport k/ϵ , c'est-à-dire de la diffusivité pneumatique du milieu, comme expliqué dans Guillon *et al.* (2013) et obtenu dans l'analyse de sensibilité conduite avec PSUADE (coefficient de sensibilité totale de 0,13).

Sur la Figure 2.3 est représenté le résultat du modèle 1D qui reproduit le mieux les données de décroissance de pression. En considérant la valeur de perméabilité à l'air de $8,0 \cdot 10^{-15} \text{ m}^2$ obtenue à partir de l'état stationnaire, la porosité à l'air qui permet de reproduire au mieux les données est de 1 %, ce qui est un peu inférieur aux valeurs de porosité obtenues avec NUFT et dans Guillon *et al.* (2013).

2.2.5 Analyse des mouvements d'eau dans la roche lors d'un test d'injection pneumatique

Dans Guillon *et al.* (2013), la possibilité d'une désaturation partielle de la roche autour de la chambre sous l'effet de l'injection d'air est discutée, qui entraînerait une augmentation de la perméabilité à l'air. Pour tester cette hypothèse et mieux comprendre les interactions entre les mouvements d'air et d'eau, plusieurs simulations ont été réalisées avec NUFT, en conditions diphasiques, dans un milieu homogène.

Les simulations décrites précédemment, de modèle initial et d'injection pneumatique, sont reprises, mais en faisant varier la valeur de la pression d'entrée d'air. Ce paramètre a en effet une influence importante sur la saturation du milieu (Tableau 2.1). On considère d'une part une pression d'entrée d'air faible ($\alpha=10^{-3} \text{ Pa}^{-1}$), plus représentative du comportement des fractures, et d'autre part une pression d'entrée d'air élevée ($\alpha=10^{-6} \text{ Pa}^{-1}$), plus représentative de la matrice, de façon à explorer indépendamment les comportements de ces 2 milieux.

Les profils verticaux de saturation en eau sont présentés en Figure 2.8. On retrouve le contrôle important exercé par le paramètre α sur la saturation en eau du milieu, avec un milieu plutôt sec quand α est élevé, et un milieu presque saturé quand α est faible. On observe que l'injection d'air ne déplace l'eau autour de la chambre d'injection que dans le deuxième cas. La baisse de saturation est inférieure à 5 %, et s'étend sur environ 20 m autour de la chambre C.

Les tests d'injection pneumatique réalisés dans la chambre doivent donc entraîner une légère désaturation de la matrice dans les quelques mètres autour de la chambre. D'après les simulations, les fractures, peu saturées, ne sont pas affectées par ces injections. Lors des injections d'air dans la chambre, une baisse du débit d'eau qui percole est pourtant mesurée au niveau de FZ2, une zone de fracture située au milieu de la chambre. D'après les simulations numériques, la saturation des fractures n'est pas modifiée lors des injections d'air dans la chambre, mais le flux ascendant d'air injecté pourrait diminuer le flux d'eau qui s'infiltre depuis la surface dans les fractures. Une autre explication possible serait que le flux d'eau dans les fractures soit alimenté depuis la matrice, qui contribuerait moins lorsque sa saturation en eau diminue.

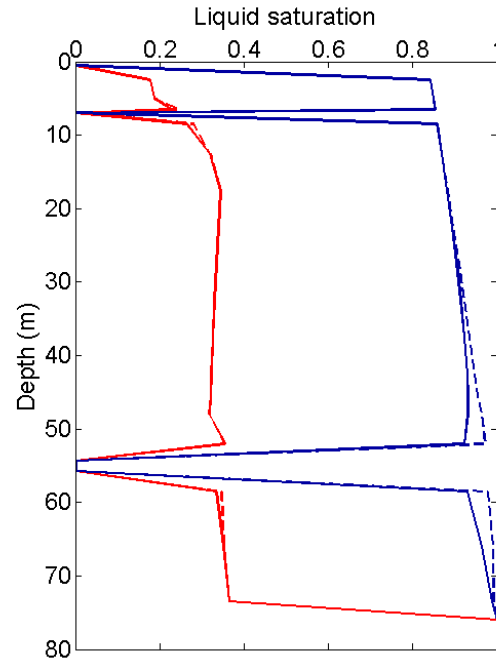


FIGURE 2.8 – Profils verticaux de saturation au niveau de la chambre C avant injection (courbes tiretées) et après 1 an d’injection d’air à 24 L/min dans la chambre (courbes pleines). Les simulations avec le code NUFT ont été effectuées dans des milieux homogènes, pour des valeurs de pression d’entrée d’air faible ($\alpha=10^{-3} \text{ Pa}^{-1}$, courbes rouges) et élevée ($\alpha=10^{-6} \text{ Pa}^{-1}$, courbes bleues). Les saturations en eau dans la chambre (à la profondeur de 55 m) et dans le forage SCH1 (à la profondeur de 7 m) sont imposées égales à 0 dans le modèle. La baisse de saturation calculée dans la roche lors de l’injection d’air n’est sensible que dans un milieu ayant une pression d’entrée d’air élevée. Cette baisse est inférieure à 5 %, et s’étend sur environ 20 m autour de la chambre C.

FIGURE 2.8 – Vertical profiles of water saturation before injection (dashed lines) and after one year of air injection at 24 L/min flow rate (solid lines). Simulations with the NUFT code were done with a low value of air entry pressure ($\alpha=10^{-3} \text{ Pa}^{-1}$, red lines) and a high value ($\alpha=10^{-6} \text{ Pa}^{-1}$, blue lines), in homogeneous media. Water saturation in the chamber (at 55 m depth) and in the borehole SCH1 (at 7 m depth) are imposed to be equal to 0. The calculated decrease in water saturation during air injection is significant only in a medium with high value of air entry pressure. This decrease is lower than 5 %, and affects less than 20 m of rocks around the chamber.

2.3 Retour sur la détermination de la diffusivité pneumatique à partir des fluctuations de pression dans la chambre

Les fluctuations de pression ont été analysées dans Guillon *et al.* (2013) à l’aide d’un modèle numérique 3D d’écoulement d’air, pour obtenir la valeur de la diffusivité pneumatique. Comme précédemment pour les tests d’injection pneumatique, j’ai cherché à reprendre cette interprétation à l’aide de simulations numériques 3D d’écoulements diphasiques avec NUFT et PSUADE. Ce travail n’a pour le moment pas permis d’ob-

tenir des résultats satisfaisants. En parallèle, j'ai utilisé des méthodes simples d'analyse fréquentielle et de modèle 1D pour déterminer la diffusivité pneumatique à partir des fluctuations de pression dans la chambre. J'ai pu comparer ces valeurs avec celles issues de la simulation numérique dans Guillon *et al.* (2013).

La pression dans le tunnel (identique à celle dans l'atmosphère extérieure mesurée par la station météorologique dans la carrière) est enregistrée en continu depuis 2010, avec un pas de temps de 15 min. Les séries temporelles continues dans la chambre sont plus courtes et fragmentées, car la chambre peut être ouverte ou mise en surpression ou en dépression selon les expériences réalisées. La Figure 2.9 présente la série temporelle de pression la plus longue obtenue à ce jour dans la chambre isolée, et simultanément dans le tunnel.

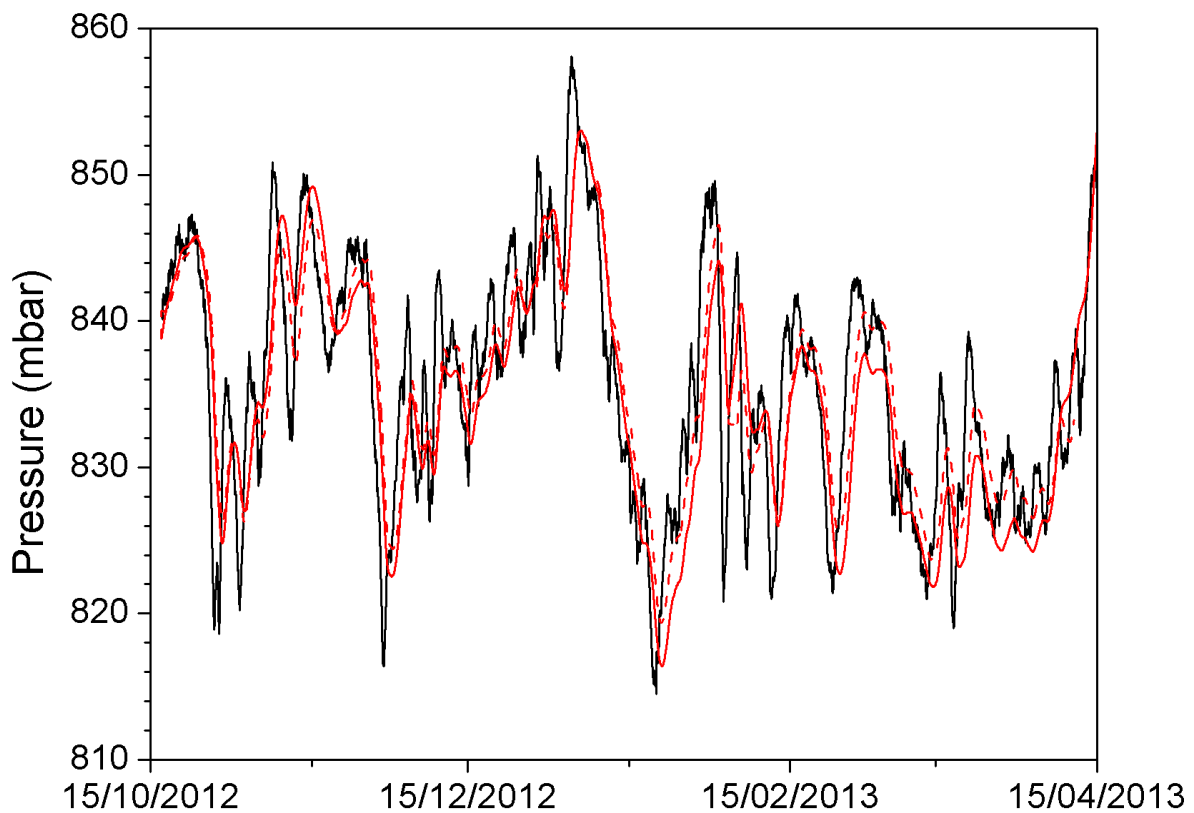


FIGURE 2.9 – Fluctuations de pression mesurées dans la chambre C (rouge) et dans le tunnel (noir). La pression dans la chambre C calculée dans le cas 1D pour une perméabilité à l'air de $3 \cdot 10^{-14} \text{ m}^2$ et une porosité à l'air de 1 % est donnée par la courbe tiretée rouge.

FIGURE 2.9 – Pressure fluctuations monitored in chamber C (red solid line) and the tunnel (black solid line). Pressure calculated in chamber C with a 1D model for a gas permeability of $3 \cdot 10^{-14} \text{ m}^2$ and a gas porosity of 1 % is shown by the red dashed line.

2.3.1 Analyse par les méthodes de traitement du signal

La pression étant un signal de nature périodique, j'ai choisi d'utiliser les méthodes de traitement du signal pour une première analyse des séries temporelles. Les méthodes

classiques de traitement du signal constituent une analyse au premier ordre, qui illustrent le phénomène de diffusion des fluctuations de pression en profondeur, et qui permettent une première estimation de la diffusivité pneumatique du milieu. L'analyse spectrale permet en particulier d'identifier les fréquences qui sont présentes dans le signal, qui peuvent indiquer la nature des forçages. La transformée de Fourier et la méthode du spectrogramme ont déjà été utilisées à Roselend et dans d'autres cavités souterraines pour interpréter les séries temporelles de pression et d'activité en radon (Richon *et al.*, 2009).

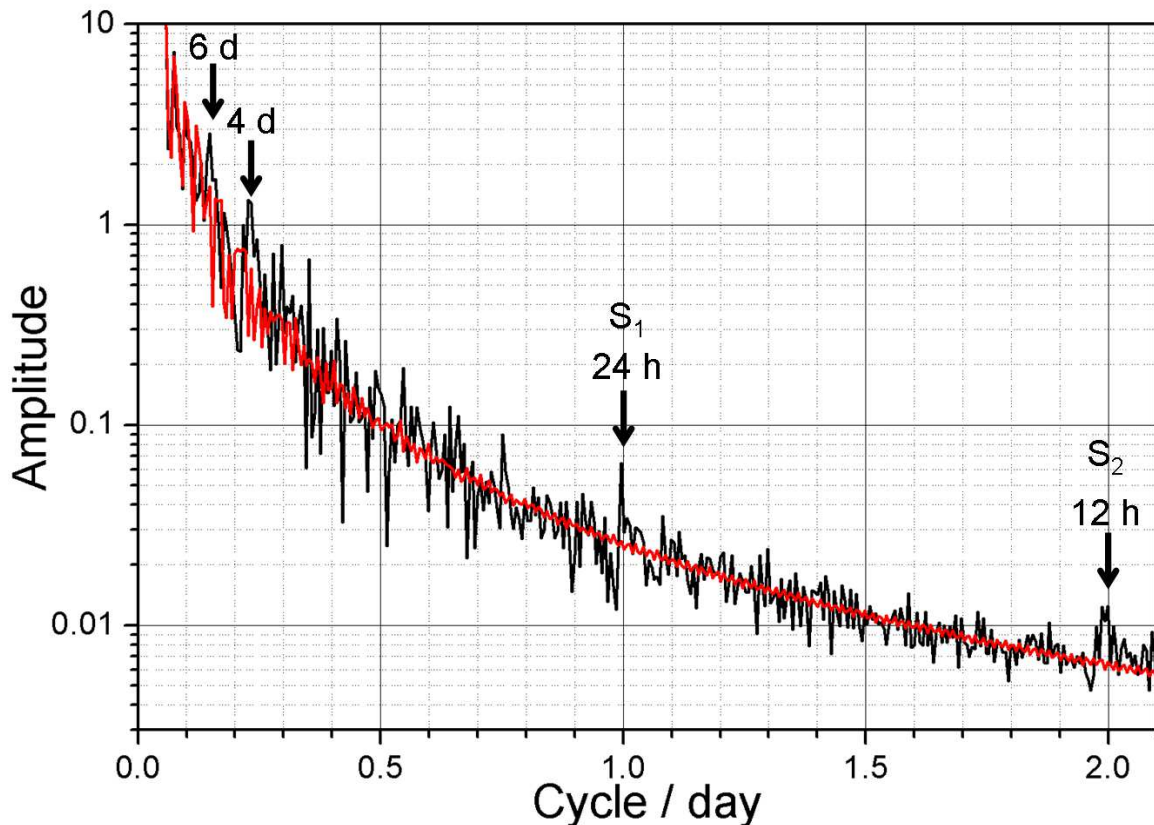


FIGURE 2.10 – Spectres de Fourier obtenus à partir des séries temporelles de la Figure 2.9, dans la chambre C (rouge) et dans le tunnel (noir). On distingue les périodicités à 12 h et 24 h, correspondant aux marées solaires S_1 et S_2 , ainsi que des périodicités à 4 et 6 jours correspondant au passage des dépressions.

FIGURE 2.10 – Fourier spectra obtained from pressure data (see Figure 2.9) in chamber C (red) and in the tunnel (black). 12 h and 24 h periods can be seen (solar tides S_1 and S_2), as well as 4 and 6 days periods corresponding to barometric lows.

La Figure 2.10 présente des spectres de la transformée de Fourier, obtenus avec le logiciel Origin, pour les séries temporelles de pression dans le tunnel et dans la chambre présentées en Figure 2.9. Le spectre de la pression dans le tunnel permet d'identifier les fréquences les plus importantes. Les périodicités diurne, avec une période de 24 h, et semidiurne, avec 12 h, sont observées. Elles correspondent aux ondes de marée solaire S_1 et S_2 (Richon *et al.*, 2009; La Rocca *et al.*, 2010). Les ondes de marée lunaires (M_1 de période 24h50 et M_2 de période 12h25) sont moins intenses et plus difficilement identifiables dans les signaux de pression atmosphérique (Arabelos *et al.*, 1997). Pour

les longues périodes, la ligne de base de l'amplitude augmente. Les périodicités de 4 et 6 jours peuvent être distinguées, qui correspondent à la fréquence moyenne du passage des dépressions. Ces fréquences sont également celles observées en Figure 2.9 pour les fluctuations d'amplitude allant de quelques mbar à près de 40 mbar.

La propagation des fluctuations de pression atmosphérique en profondeur correspond à un phénomène de diffusion d'une onde de pression dans un milieu poreux (Neeper, 2002). Sur la Figure 2.9, les fluctuations de pression à haute fréquence observées dans le tunnel n'existent pas dans la chambre. Sur la Figure 2.10, les hautes fréquences, semi-diurne et diurne, sont ainsi absentes du signal enregistré dans la chambre. Le phénomène de diffusion agit en effet comme un filtre passe-bas : seules les fréquences inférieures à un seuil (appelé fréquence de coupure, cf. Annexe C) sont conservées. Le spectre présenté en Figure 2.10 ne permet pas de déterminer précisément la fréquence de coupure, mais les fréquences supérieures à 0,5 cycle par jour (i.e. les périodes inférieures à 48 h) sont quasiment absentes dans la chambre. Les basses fréquences sont observées dans la chambre, avec des amplitudes plus faibles que celles dans le tunnel. Les spectres obtenus ne permettent pas de calculer l'atténuation d'amplitude dans la chambre par rapport au tunnel, car on n'observe pas de périodicité marquée dans la chambre (Figure 2.10).

Le calcul de la corrélation croisée entre les séries de pression dans la chambre et dans le tunnel permet d'estimer le déphasage entre ces deux signaux. La corrélation maximale est obtenue pour un retard de 27 h. Cette valeur est comparable au retard de phase de 25 h obtenu par l'Équation 2.6 de l'Annexe C pour une période moyenne de 4 jours et pour la diffusivité pneumatique obtenue dans Guillon *et al.* (2013).

2.3.2 Inversion des paramètres pneumatiques à l'aide d'un modèle 1D

Après l'étude préliminaire réalisée avec les méthodes de traitement du signal, une première estimation de la diffusivité pneumatique est obtenue à l'aide d'un modèle simplifié 1D. Des simulations 3D ont été réalisées avec NUFT, mais sans pour le moment arriver à reproduire les résultats obtenus dans Guillon *et al.* (2013). Le modèle 1D est présenté dans l'Annexe C. L'évolution de la pression dans la chambre est régie par l'Équation 7 de l'Annexe C. Ce modèle fait deux simplifications principales. La pression atmosphérique est considérée comme une sinusoïde. En réalité, c'est une somme d'ondes sinusoïdales, dont les fréquences ont été identifiées grâce à la transformée de Fourier. Dans cette section, l'approximation est faite que la pression dans la chambre C est contrôlée par la diffusion verticale de la pression atmosphérique sur une distance z de 55 m. En réalité, dans la géométrie réelle de la chambre C, il faut considérer à la fois la diffusion des fluctuations de pression atmosphérique depuis la surface sur 55 m, mais également depuis le tunnel, sur une distance plus courte de l'ordre de quelques mètres (voir la Figure 3c dans Guillon *et al.* (2013)). L'approximation 1D verticale n'est ainsi pas totalement justifiée.

L'équation de diffusion en géométrie 1D (Équation 7 de l'Annexe C) est résolue numériquement dans un domaine fini, en reprenant l'approche de Poirel (2010) utilisée pour la modélisation de la hauteur d'eau de la nappe mesurée dans le forage F1 à partir du niveau d'eau dans le lac de Roselend. Il existe en effet une analogie parfaite entre la hauteur d'eau de la nappe et la pression dans la chambre C, qui sont toutes les

deux obtenues par la résolution d’une équation de diffusion. L’équation de diffusion est discrétisée dans l’espace et le temps, en utilisant un schéma implicite en temps et centré en espace. Le choix du schéma implicite permet d’assurer la stabilité du modèle, même pour une petite valeur du pas d’espace. Les mesures de la pression atmosphérique sont utilisées comme condition limite en surface. Une condition de flux nul est appliquée au niveau de la nappe, à une profondeur de 10 mètres sous le tunnel.

La pression à 55 m de profondeur calculée avec ce modèle est ensuite comparée aux mesures dans la chambre. La valeur de la diffusivité est modifiée jusqu’à obtenir le meilleur accord possible entre les résultats du modèle et les données. Comme cela a été fait dans Guillon *et al.* (2013), le modèle qui reproduit le mieux les données est choisi par essais successifs, et observation visuelle des résultats, sans quantification de l’écart entre le modèle et les données. Une approche plus systématique d’inversion devra être réalisée, en particulier avec PSUADE et la méthode de minimisation d’une fonction objectif présentée précédemment pour les tests d’injection pneumatique.

Les résultats du modèle obtenu sont présentés en Figure 2.9 et correspondent à une diffusivité de $4,7 \cdot 10^{-3} \text{ m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$, soit une perméabilité à l’air de $3 \cdot 10^{-14} \text{ m}^2$ en prenant une valeur de porosité à l’air de 1 %. Cette valeur de diffusivité ne diffère que d’un facteur 2 de la valeur de $1,0 \cdot 10^{-2} \text{ m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$ obtenue dans Guillon *et al.* (2013). Le modèle 1D apparaît donc comme un outil pertinent pour interpréter des chroniques de pression.

Le modèle numérique 1D utilisé précédemment dans la chambre a également été utilisé pour déterminer la perméabilité à partir des mesures de fluctuations de pression dans le forage Perm 1. Les premières données avaient été acquises dans le forage Perm 1 en 2009 et ont fait l’objet d’une interprétation quantitative à partir du déphasage et de l’Équation 2.6. Ces résultats sont présentés dans Wassermann *et al.* (2011) (Figure 10a). Cet article est inséré en Annexe A. Deux régimes avaient cependant été observés, l’un avec une pression peu atténuée, l’autre avec une pression très atténuée par rapport à la pression atmosphérique. La perméabilité à l’air déterminée pour le régime peu atténué est de $3 \cdot 10^{-16} \text{ m}^2$, pour une porosité à l’air de 5 %.

La Figure 2.11 présente une chronique de pression d’air enregistrée dans le forage Perm 1 en 2012, à l’aide d’un capteur Diver (Schlumberger Water Services), fixé directement sous l’obturateur gonflable qui isole le forage de l’atmosphère. Le capteur est placé en position haute dans le forage afin d’éviter son immersion dans l’eau qui pourrait s’accumuler dans le forage. Ces capteurs offrent l’avantage d’être très compacts, avec une longue autonomie et une bonne précision ($\pm 0,5 \text{ mbar}$).

L’évolution de la pression dans le forage est calculée avec le modèle 1D utilisé précédemment dans la chambre, avec une profondeur de 1 m (au lieu de 55 m dans le cas de la chambre). Pour une porosité de 1 %, une perméabilité de $5 \cdot 10^{-19} \text{ m}^2$ permet de reproduire la tendance des mesures (Figure 2.11), toutefois avec un écart qui augmente avec le temps jusqu’à 5 mbar. Cette divergence pourrait être expliquée par l’arrivée d’une lame d’eau qui s’infiltré depuis la surface à cause de la fonte du manteau neigeux (voir Chapitre 3 pour plus de détails). La perméabilité obtenue est trois ordres de grandeurs inférieure à celle obtenue par Wassermann *et al.* (2011), et correspond à celle du régime de pression très atténuée. Si l’on exclut l’hypothèse d’une fuite du dispositif de mesure lors du régime à forte perméabilité, la transition d’un régime peu atténué vers un régime très atténué pourrait être expliquée par une augmentation importante de la teneur en eau de la roche autour du forage.

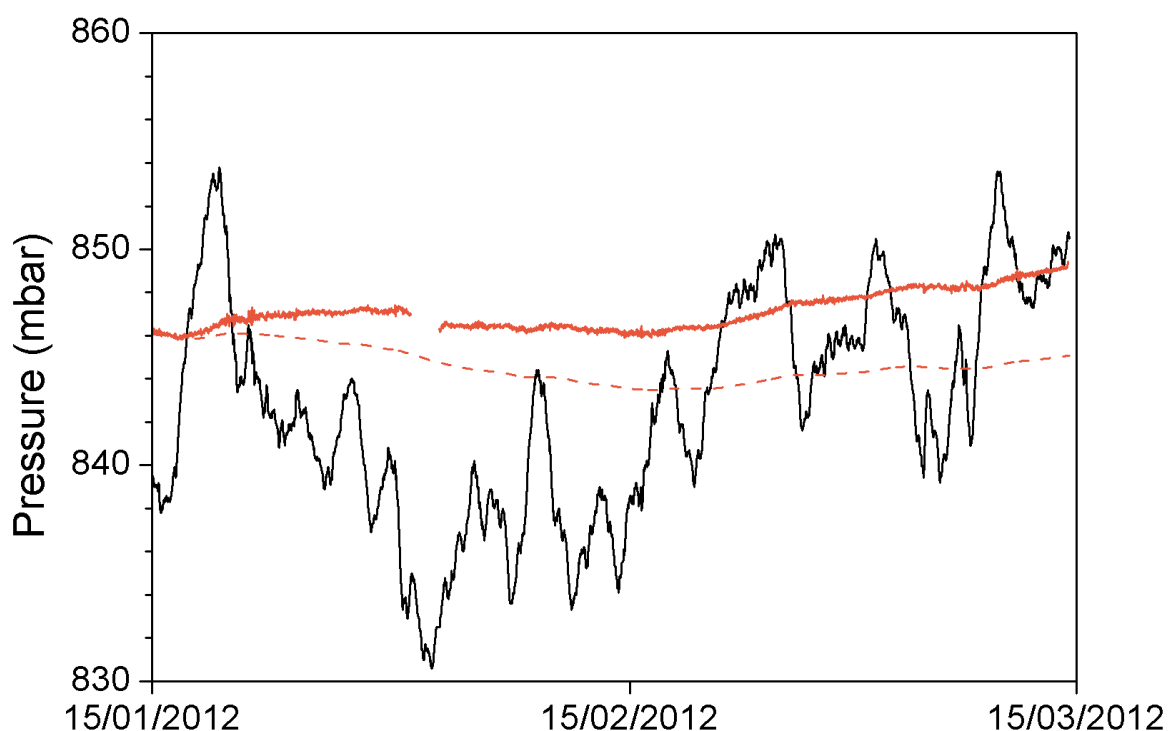


FIGURE 2.11 – Pression mesurée dans le forage Perm 1 (rouge) et dans le tunnel (noir). La pression dans le forage, calculée avec un modèle 1D pour une perméabilité à l’air de $5 \cdot 10^{-19} \text{ m}^2$ et une porosité à l’air de 1 % est donnée par la courbe tiretée rouge.

FIGURE 2.11 – Pressure measured in borehole Perm 1 (red solid line) and in the tunnel (black solid line). The red dashed line corresponds to the pressure calculated in the borehole with a 1D model for a permeability of $5 \cdot 10^{-19} \text{ m}^2$ and a porosity of 1 %.

De la même manière, les mesures de fluctuations de pression dans le forage Perm 3 (données non présentées) permettent d’obtenir une valeur de perméabilité de $2 \cdot 10^{-18} \text{ m}^2$.

2.3.3 Estimation des variations temporelles de la diffusivité pneumatique

Pour finir, j’ai cherché à identifier d’éventuelles variations temporelles de la diffusivité. De telles variations pourraient refléter des variations de la teneur en eau du milieu, qui est un paramètre difficilement mesurable dans les roches.

Le modèle 1D présenté ci-dessus permet de déterminer la diffusivité pneumatique pour une période de plusieurs mois. Pour déterminer les valeurs de la diffusivité pneumatique sur une période de quelques jours, une autre méthode est utilisée, basée sur le déphasage et l’atténuation de la pression dans la chambre par rapport au tunnel. D’après l’Annexe B, la diffusivité pneumatique peut être estimée soit à partir de l’atténuation

de l'amplitude (on la note alors D_A) :

$$D_A = \frac{\pi z^2}{T \ln(A)^2} \quad (2.5)$$

soit à partir du déphasage temporel (on la note alors D_τ) :

$$D_\tau = \frac{z^2}{\Delta\tau^2} \frac{T}{4\pi} \quad (2.6)$$

où $z=55$ m est la profondeur de la chambre C, T la période (en s), A l'atténuation (sans unité) et $\Delta\tau$ le déphasage (en s).

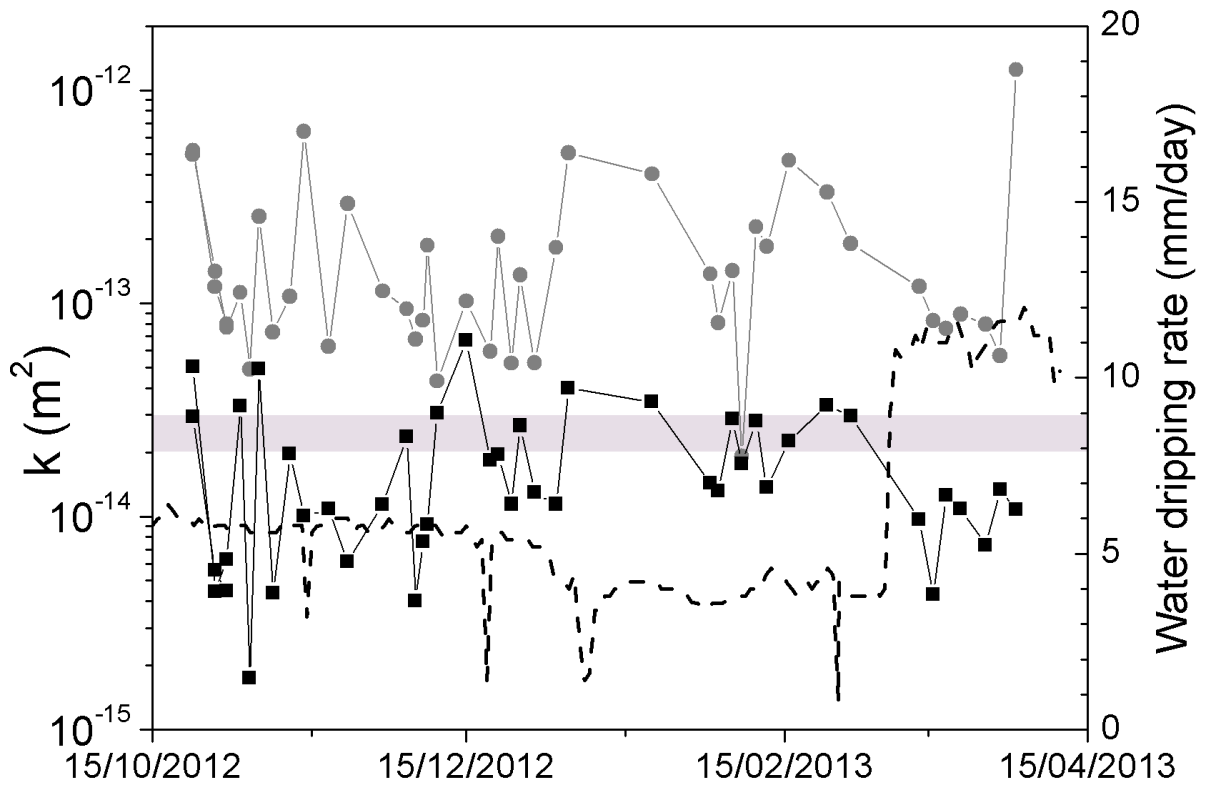


FIGURE 2.12 – Perméabilité à l’air calculée à partir du déphasage (ronds gris) et de l’atténuation (carrés noirs) de la pression dans la chambre par rapport à la pression atmosphérique. Chaque valeur est calculée pour un extremum de pression, à partir d’un modèle 1D et d’une porosité à l’air de 1 %. La zone grisée indique la perméabilité obtenue dans Guillon *et al.* (2013) avec un modèle 3D, pour la même valeur de porosité. Le débit d’eau au toit de la chambre, mesuré par un pluviomètre situé au niveau d’une fracture, est indiqué par la courbe pointillée.

FIGURE 2.12 – Permeability calculated from time lag (grey circles) and amplitude attenuation (black squares) of pressure in chamber C compared to atmospheric pressure. Values are calculated at pressure extrema, using a 1D model and a porosity of 1 %. The grey zone corresponds to the permeability obtained by Guillon *et al.* (2013) for a 3D model with the same porosity. The flow rate of water dripping at the roof of the chamber, measured by a rain gauge below a fracture, is indicated by the dashed line.

A partir des séries de données présentées en Figure 2.9, deux valeurs de diffusivité pneumatique ont été déterminées à partir de chaque extremum identifiable de la pression dans la chambre : D_τ à partir du décalage temporel entre les extremum dans la chambre et dans le tunnel ; D_A à partir de l'atténuation de l'amplitude de l'oscillation qui précède l'extremum. La période T utilisée dans les Équations 2.5 et 2.6 est celle de l'oscillation qui précède l'extremum. Les résultats sont présentés en Figure 2.12 en termes de valeurs de perméabilité à l'air, obtenues à partir de la diffusivité avec une porosité à l'air de 1 %.

Tout d'abord, les valeurs de diffusivité pneumatique obtenues sont bien du même ordre de grandeur que celles obtenus avec un modèle 3D dans Guillon *et al.* (2013). On constate ensuite que la perméabilité estimée à partir du déphasage est systématiquement un ordre de grandeur plus élevée que celle estimée à partir de l'atténuation, tout en présentant les mêmes évolutions relatives. Ces valeurs sont déterminées à partir d'un relevé manuel sur la Figure 2.9 et sont entachées d'une erreur d'environ 50 %. Une étude théorique indique que la méthode d'atténuation est à préférer à celle de déphasage, moins sensible (Lu, 1999). Les résultats obtenus à partir de l'atténuation sont en effet plus cohérents avec ceux obtenus par simulation numérique (Figure 2.12).

Les perméabilités déterminées à partir d'une série temporelle longue de 6 mois ne permettent pas d'identifier de variations temporelles. Une variabilité allant jusqu'à un facteur 10 est observée, mais pas de tendance significative. L'utilisation d'une série temporelle d'une année complète permettrait de confirmer ce résultat, en couvrant les différentes saisons hydrologiques, sèche et humide. L'existence possible de variations temporelles de la perméabilité à l'air serait en effet reliée à des variations importantes de la saturation en eau de la roche. Le débit d'eau qui percole au toit de la chambre, présenté en Figure 2.12, est considéré comme un indicateur du niveau de saturation de la roche au dessus du tunnel. Un doublement du débit d'eau est observé après le 06/03/2013, mais qui n'est pas associé à une baisse significative de la perméabilité à l'air, comme on pourrait s'y attendre si la saturation en eau augmente.

2.4 Comparaison des méthodes de test d'injection pneumatique et de mesure des fluctuations de pression

Les différences entre les résultats obtenus par les deux méthodes de mesure de perméabilité ont été présentées et discutées dans l'article Guillon *et al.* (2013). Je discute ici plus particulièrement du volume de roche testé par chaque méthode ainsi que la sensibilité à l'hétérogénéité spatiale. Pour cela, des simulations d'injection pneumatique et de diffusion des fluctuations de pression ont été réalisées avec NUFT dans des modèles hétérogènes multicouches. Les différents modèles utilisés sont présentés en Figure 2.13. Le cas de référence (non représenté) correspond à un milieu homogène monocouche de perméabilité $8 \cdot 10^{-15} \text{ m}^2$ et de porosité 4,4 %. On considère ensuite trois modèles avec une couche supérieure à forte perméabilité, de la surface jusqu'à une profondeur de 15, 35 ou 50 m, et une couche inférieure à faible perméabilité. On considère également un modèle avec une zone de 1 m à forte perméabilité tout autour du tunnel, pour représenter la zone endommagée (EDZ), et une faible perméabilité ailleurs.

Dans chacun de ces 5 cas, on réalise une simulation d'injection pneumatique dans la chambre, et une simulation de diffusion des fluctuations de la pression atmosphérique entre la chambre et l'atmosphère. Pour les simulations d'injection pneumatique, la valeur de perméabilité apparente est obtenue à partir de la pression à l'état stationnaire dans la chambre et de la formule analytique dans le cas 1D (Équation 2.4). Pour les simulations des fluctuations de pression, la perméabilité apparente est obtenue à partir du déphasage entre les pressions dans la chambre et l'atmosphère (Équation 2.6), car l'atténuation est trop élevée pour être quantifiée précisément.

Les valeurs de perméabilité apparente k_{model} obtenues par chacune des méthodes sont comparées avec les perméabilités des milieux homogènes équivalents k_{eq} , obtenue par la moyenne harmonique des perméabilités des deux couches horizontales, pondérées par leurs épaisseurs :

$$\frac{Z}{k_{eq}} = \frac{z_1}{k_1} + \frac{z_2}{k_2} \quad (2.7)$$

avec $Z=55$ m la profondeur de la chambre, $k_1=5 \cdot 10^{-13} \text{ m}^2$, z_1 l'épaisseur de la couche supérieure perméable ou de l'EDZ, $k_2=8 \cdot 10^{-15} \text{ m}^2$, $z_2=Z-z_1$ l'épaisseur de la couche moins perméable. L'Équation 2.7 est démontrée en Annexe D.

Comme présenté dans la Figure 2.14, les résultats obtenus avec les deux méthodes sont clairement différents. Les tests d'injection pneumatique donnent des valeurs de perméabilité apparente égales à un facteur deux près à la valeur de la perméabilité du milieu peu perméable dans lequel se trouve la chambre. Les valeurs de perméabilité obtenues varient très peu avec la perméabilité équivalente. Cette première méthode n'est pas sensible à la présence de la couche plus perméable dès que celle-ci est située à plus de 5 m de distance par rapport à la chambre. Le volume testé est limité aux premiers mètres autour de la chambre. Cette méthode n'est par ailleurs pas sensible à la présence d'une EDZ, car celle-ci est trop peu épaisse. En revanche, la mesure des fluctuations de pression dans la chambre donne des valeurs de perméabilité apparente qui varient avec la perméabilité équivalente. Cette deuxième méthode est sensible à la totalité du milieu entre la surface et la chambre de mesure. Ces simulations et les résultats obtenus

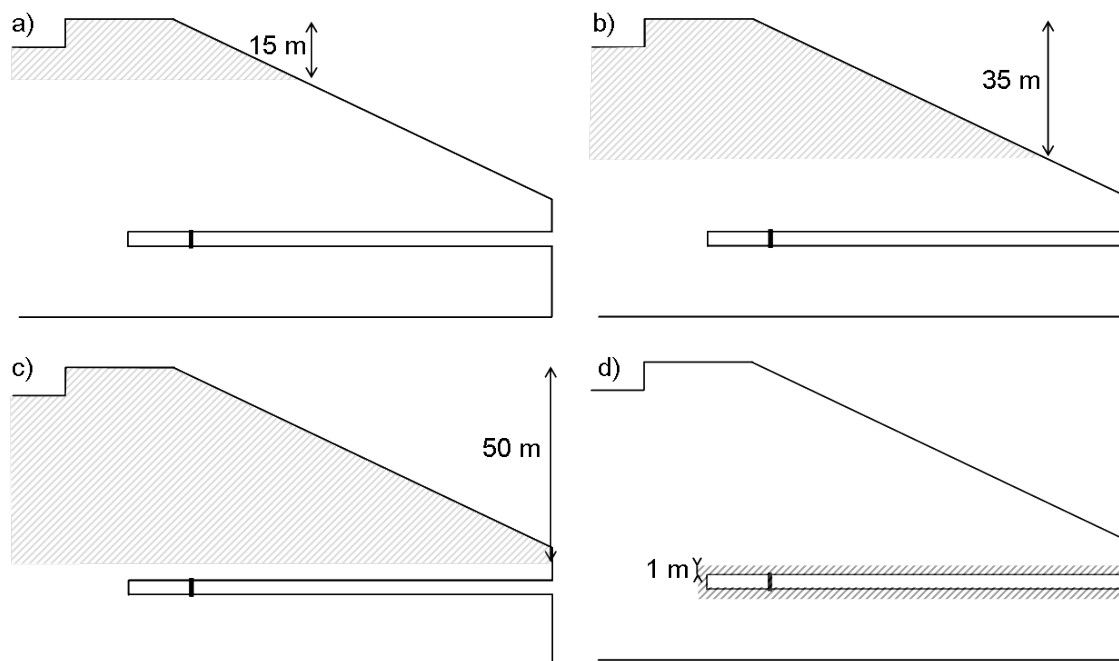


FIGURE 2.13 – Modèles numériques utilisés pour tester la sensibilité des deux méthodes de détermination de la perméabilité à l'hétérogénéité spatiale. Les domaines hachurés ont une perméabilité de $5 \cdot 10^{-13} \text{ m}^2$, alors que les domaines blancs ont une perméabilité plus faible, de $8 \cdot 10^{-15} \text{ m}^2$. La porosité est partout égale à 4,4 %. Les modèles a), b) et c) représentent l'existence d'une couche à forte perméabilité en surface, d'épaisseur croissante, alors que le modèle d) représente l'existence d'une zone endommagée à forte perméabilité autour du tunnel, d'une épaisseur de 1 m.

FIGURE 2.13 – Numerical models used to test the sensibility of the two methods to estimate permeability to spatial heterogeneity. The hatched zones have a permeability of $5 \cdot 10^{-13} \text{ m}^2$, while the white zones have a lower permeability, of $8 \cdot 10^{-15} \text{ m}^2$. Porosity is 4,4 % in both zones. a), b) and c) models represent a high permeability layer at the surface, of increasing thickness, while d) model represents a high permeability excavation damaged zone around the tunnel, of 1 m thickness.

confirment et précisent l'interprétation proposée dans Guillon *et al.* (2013). L'injection pneumatique est une méthode ayant une sensibilité locale, alors que les fluctuations de pression ont une sensibilité globale.

La différence d'un ordre de grandeur entre les perméabilités obtenues par interprétation des injections d'air dans la chambre C et des fluctuations de pression s'explique donc par la présence d'une couche de plus forte perméabilité en surface (Figure 2.13, cas c).

La réalisation de 2 forages verticaux de 130 m de profondeur dans la carrière du Laboratoire Naturel de Roselend, en août 2013, permettra à terme d'effectuer des profils de perméabilité à travers la zone non saturée, qui permettront de préciser la distribution verticale de la perméabilité.

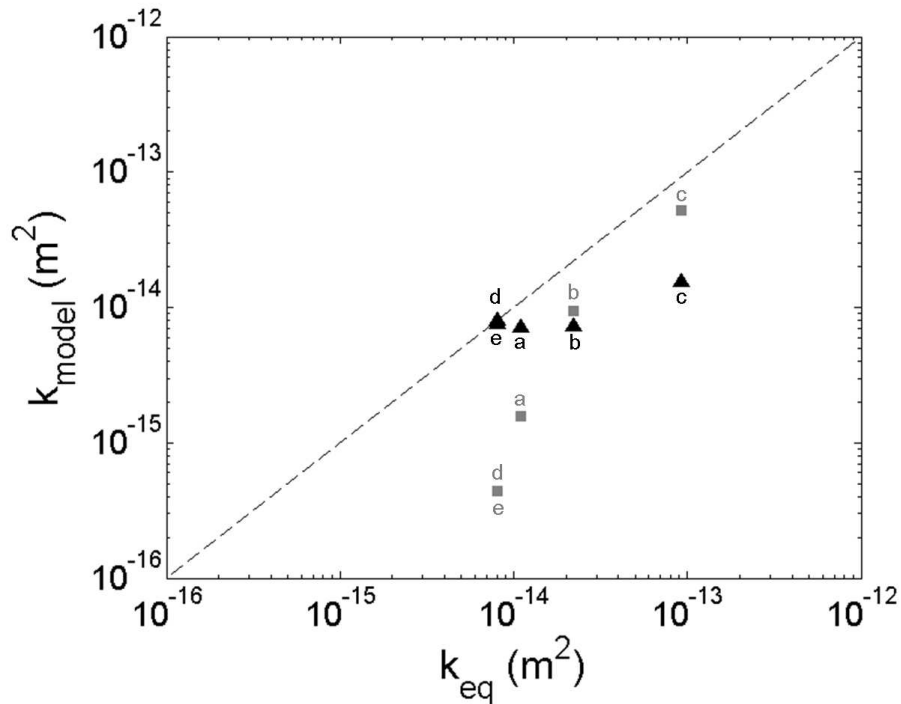


FIGURE 2.14 – Perméabilité apparente k_{model} obtenue à partir de modélisations de tests d’injection pneumatique (triangles) et de mesures des fluctuations de pression (carrés) dans la chambre, en fonction de la perméabilité du milieu homogène équivalent k_{eq} (Équation 2.7). Les quatre modèles hétérogènes considérés, a, b, c et d, sont présentés en Figure 2.13. Le modèle homogène e est le modèle de référence.

FIGURE 2.14 – Apparent permeability k_{model} obtained from computations of pneumatic injection tests (triangles) and of pressure fluctuations (squares) in the chamber, as a function of the permeability of the equivalent homogeneous model k_{eq} (Equation 2.7). The 4 heterogeneous models, a, b, c and d, are presented in Figure 2.13. The homogeneous model e is the reference model.

2.5 Synthèse des perméabilités déterminées au Laboratoire Naturel de Roselend

2.5.1 Perméabilité à l’échelle métrique

Le Tableau 2.2 récapitule les valeurs des paramètres pneumatiques obtenus par les deux méthodes dans les forages Perm de la paroi du tunnel et dans les forages SC en surface. La faible valeur de perméabilité obtenue dans le forage Perm 4 par injection pneumatique est à considérer comme une borne supérieure, surestimée, car la saturation du capteur de pression avait été atteinte malgré le faible débit d’injection. Les valeurs de perméabilité obtenues dans les forages Perm 1 et Perm 3 à partir des chroniques de pression, de l’ordre de 10^{-19} m^2 , sont un à deux ordres de grandeurs inférieures à celles obtenues dans les autres forages. Elles sont représentatives de la perméabilité de la matrice.

Des valeurs de perméabilité à l’échelle métrique ont donc été obtenues dans les diffé-

TABLEAU 2.2 – Synthèse des valeurs de perméabilité et de porosité estimées à l'échelle métrique au Laboratoire Naturel de Roselend.

TABLE 2.2 – *Summary of permeability and porosity values estimated at the metric scale at the Roselend Natural Laboratory.*

Method	Location	k (m ²)	ε (%)	Source
Pneumatic injection test	Boreholes SC	$1 \cdot 10^{-16}$ - $1 \cdot 10^{-13}$	0.2-3.0	Guillon <i>et al.</i> (2013)
Pneumatic injection test	Boreholes Perm 4 - 10	$6 \cdot 10^{-17}$ * - $8 \cdot 10^{-15}$	2.2-3.3	Guillon <i>et al.</i> (2013)
Pressure fluctuations	Boreholes Perm 1 and 3	$5 \cdot 10^{-19}$ - $2 \cdot 10^{-18}$	1	this work

* upper limit for permeability in borehole Perm 4.

rents forages du Laboratoire Naturel de Roselend. Le milieu fracturé apparaît fortement hétérogène à cette échelle, avec jusqu'à 4 ordres de grandeur de différence entre la perméabilité de la matrice et celle des zones fracturées. Localement, la présence de la zone endommagée autour du tunnel augmente la perméabilité d'un ordre de grandeur (Wassermann *et al.*, 2011).

2.5.2 Perméabilité à l'échelle décimétrique

Les valeurs des paramètres pneumatiques obtenues à l'échelle décimétrique à partir de la chambre C dans le cadre de cette thèse sont récapitulées dans le Tableau 2.3. Elles sont comparées avec d'autres valeurs obtenues précédemment aux mêmes échelles d'espace, à partir d'écoulements d'eau. Ces valeurs et les méthodes ayant permis de les obtenir ont été présentées dans la Section 1.3.

TABLEAU 2.3 – Synthèse des valeurs de perméabilité et de porosité estimées à l'échelle décimétrique au Laboratoire Naturel de Roselend.

TABLE 2.3 – *Summary of permeability and porosity values estimated at the decametric scale at the Roselend Natural Laboratory.*

Method	Location	k (10 ⁻¹⁴ m ²)	ε (%)	Source
Simulations of fracture network and infiltration rate	Tunnel	30	0.33	Patriarche <i>et al.</i> (2007) Pili <i>et al.</i> (2008a)
Pumping test	Borehole F1	0.3-1.0		Pili <i>et al.</i> (2008a)
Pressure monitoring	Chamber C	10-15	4.7	Guillon <i>et al.</i> (2013)
Air injection	Chamber C	0.8	4.7	Guillon <i>et al.</i> (2013)
Pressure monitoring	Chamber C	3	1	1D model
Air injection	Chamber C	0.8±0.3	4.4	NUFT (2 phase-flow)

Les résultats forment un ensemble cohérent dans lequel deux groupes de valeurs de perméabilité se distinguent selon le type de méthode utilisé. D'une part, les pompes d'essai dans le forage F1 et l'injection pneumatique dans la chambre donnent des perméabilités de l'ordre de 10⁻¹⁴ m². Ces deux méthodes mettent en jeu des processus

identiques, et diffèrent seulement par la nature du fluide pompé, eau ou air. Elles ont toutes deux un rayon d'influence restreint. Les simulations numériques l'ont montré pour la chambre (Guillon *et al.*, 2013). Lors des pompages d'essai dans le forage F1, le rayon d'influence estimé d'après les formules de Dupuit et de Jacob (De Marsily, 1986) est inférieur à 15 m.

D'autre part, la diffusion des fluctuations de pression et les simulations de percolation d'eau entre la surface et le tunnel donnent des perméabilités de l'ordre de 10^{-13} m². La mesure des fluctuations de pression intègre la perméabilité de tout le massif de roche, de la chambre jusqu'à la surface soit 55 m, ce qui correspond aussi au volume modélisé par Patriarche *et al.* (2007) pour déterminer la perméabilité verticale.

Le fait que la perméabilité obtenue par les méthodes à large rayon d'influence soit un ordre de grandeur supérieur à la perméabilité obtenue par les méthodes locales révèle une fois de plus l'hétérogénéité du milieu. La partie superficielle du milieu à laquelle les méthodes locales ne sont pas sensibles a une perméabilité plus élevée que la partie plus profonde, autour du tunnel et de la chambre. Les perméabilités obtenues en surface dans les forages SC sont ainsi un ordre de grandeur supérieures à celles obtenues en profondeur dans les forages Perm. Cette diminution de la perméabilité avec la profondeur est observée à l'échelle de plusieurs centaines de mètres de profondeur dans les roches cristallines (Mazurek, 2000). Elle est à mettre en relation avec une augmentation de la densité du réseau de fractures en surface, effectivement observée au Laboratoire Naturel de Roselend (Tableaux 1.3 et 1.4 et Guillon *et al.* (2013)), et elle-même liée à une augmentation de l'altération mécanique et chimique en surface.

2.6 Conclusion

Cette étude expérimentale et numérique a permis de déterminer les paramètres pneumatiques, porosité et perméabilité à l'air, à des échelles variant de 1 m à 50 m, intermédiaires entre l'échelle de l'échantillon et celle du bassin versant. Pour cela, des méthodes numériques d'inversion de paramètres ont été utilisées. Les modèles 1D apparaissent comme des outils simples, qui permettent de déterminer rapidement les paramètres dans chaque nouveau système, et de renouveler les déterminations à différentes périodes et dans différents régimes hydrologiques.

Deux méthodes expérimentales ainsi que les moyens numériques pour leur interprétation ont été mis en œuvre pour obtenir les valeurs des paramètres pneumatiques du milieu. L'utilisation de deux méthodes expérimentales à la fois dans les forages et dans la chambre a permis d'étudier la perméabilité du milieu pour trois échelles d'espace croissantes. Dans les forages du tunnel et de la surface, la perméabilité est déterminée à l'échelle de quelques mètres. A cette échelle, les résultats obtenus sont très dispersés à cause de l'hétérogénéité du milieu fracturé. Dans la chambre, la perméabilité obtenue par test d'injection pneumatique correspond à une échelle d'une dizaine de mètres. A cette échelle, l'hétérogénéité du milieu fracturé est moyennée. Enfin, la perméabilité obtenue à partir des fluctuations de pression dans la chambre est représentative des 55 mètres de roche entre la chambre et la surface, et intègre des perméabilités qui peuvent varier sur cette épaisseur. Une telle approche est nécessaire pour une bonne connaissance de la structure du milieu.

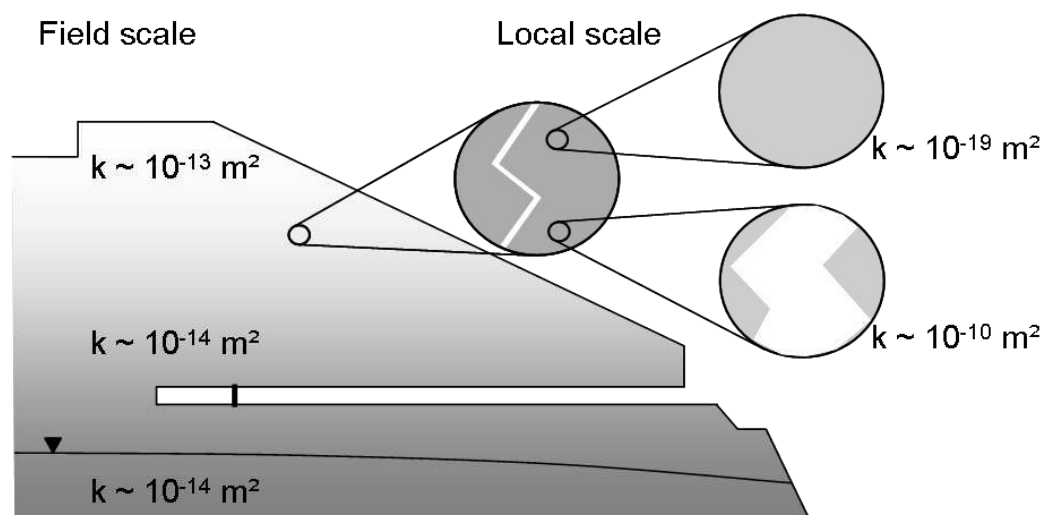


FIGURE 2.15 – Schéma de synthèse des valeurs de perméabilité des roches du Laboratoire Naturel de Roselend obtenues dans ce travail. La valeur de la perméabilité des roches est contrôlée par celle du réseau de fractures, et augmente vers la surface. La valeur de la porosité est estimée entre 0,2 et 5 % (Guillon *et al.*, 2013).

FIGURE 2.15 – Summary of permeability of the rocks of the Roselend Natural Laboratory obtained in this work. Permeability of the rock is controlled by that of the fracture network, and increases towards the surface. Porosity value is estimated between 0.2 and 5 % (Guillon *et al.*, 2013).

La Figure 2.15 représente l'image de la perméabilité des roches du Laboratoire Naturel de Roselend obtenue à l'issue de ce travail. Les valeurs de perméabilité obtenues pour le réseau des fractures varient entre 10^{-14} m^2 à 55 m de profondeur, et 10^{-13} m^2 en surface (Figure 2.15). La perméabilité de 10^{-10} m^2 pour une fracture est estimée à partir des temps de percée des traceurs (Chapitre 4). La matrice est quant à elle quasiment imperméable, avec une perméabilité de l'ordre de 10^{-19} m^2 (Figure 2.15).

A l'échelle de 55 m, la perméabilité a été déterminée pour un milieu poreux homogène isotrope équivalent aux roches du Laboratoire Naturel de Roselend. Les résultats obtenus par Pili *et al.* (2004) et Patriarche *et al.* (2007) montrent qu'il existe en réalité un réseau de fractures, grandes et petites, et une matrice poreuse. Les simulations numériques devront à terme être réalisées avec un modèle à double perméabilité prenant en compte les réseaux de fractures et la matrice. Les valeurs de perméabilité et de porosité obtenues seront utilisées pour l'interprétation de la dynamique naturelle des gaz (Chapitre 3) et des expériences de traçages (Chapitre 4).

Chapitre 3

Détection des gaz : comprendre la dynamique naturelle

La compréhension des évolutions spatiales et temporelles des gaz naturellement présents en sub-surface est importante en elle-même, mais elle aide également à préparer, réaliser et interpréter les expériences de traçage (Chapitre 4). La détection d'une arrivée de gaz est définie par un changement (le plus souvent une augmentation) par rapport à sa ligne de base naturelle. Il est donc crucial de connaître et comprendre la dynamique de cette ligne de base. La dynamique naturelle des gaz est complexe, car elle résulte de nombreux phénomènes. Le suivi simultané de plusieurs gaz, aux origines et propriétés variées, permet d'identifier les différents phénomènes mis en jeu et de distinguer leurs effets respectifs sur les variations observées des concentrations en gaz.

Dans ce chapitre, après avoir présenté les différents gaz auxquels on s'intéresse ainsi que les moyens utilisés pour les mesurer, une synthèse des productions de gaz dans les roches du Laboratoire Naturel de Roselend est présentée. Les variations en SF_6 , CO_2 et ^{222}Rn ont été suivies dans le tunnel et dans la chambre, et les résultats obtenus concernent leurs lignes de base ainsi que les anomalies. Ces résultats sont présentés sous forme d'article, complété par des simulations numériques. La dynamique naturelle des gaz en sub-surface et en surface s'est avérée être très complexe, et ne permet pas d'interprétation pour le moment. Enfin, une nouvelle génération d'instruments de mesure des compositions isotopiques par spectroscopie d'absorption infrarouge (Isotope-Ratio Infrared Spectroscopy, IRIS) a été utilisée pour suivre les différentes sources de CO_2 au Laboratoire Naturel de Roselend.

3.1 Protocoles pour l'analyse des gaz en sub-surface

Comme présenté en Section 1.3 et en Figure 1.10, les installations du Laboratoire Naturel de Roselend permettent d'analyser les gaz à différentes profondeurs de la zone non saturée. Un profil vertical à l'échelle de 50 m est ainsi réalisé, qui donne une vision globale du fonctionnement de la zone non saturée et de ses interactions avec l'atmosphère. A 55 m de profondeur, la chambre et les forages Perm représentent le cœur de la zone non saturée ; entre 4 et 10 m de profondeur, les forages SC et SCH1 représentent la sub-surface, plus connectée avec l'atmosphère ; les piézomètres PZ, forages courts T et le

TABLEAU 3.1 – Propriétés des gaz étudiés.

TABLE 3.1 – *Properties of the studied gases.*

Gaz	Molecular mass ⁽¹⁾ (g·mol ⁻¹)	Saturation vapor pressure ⁽²⁾ (at 15 °C) (bar)	Diffusion coefficient ⁽³⁾ (10 ⁻⁵ m ² · s ⁻¹)	Solubility at 0 °C ⁽²⁾ $C_{dissolved}/C_{gaz}$	GWP ₁₀₀ *	Atmos. conc.
⁴ He	4	-	7.1	0.009	-	5.24 ppm ⁽⁴⁾
³ He	3					7.3 ppt ⁽⁴⁾
CO ₂	44	58.5	1.5 ⁽⁶⁾	1.72	1	410 ppm ⁽⁵⁾
¹³ CO ₂	45					4.6 ppm ⁽⁵⁾
²²² Rn	222	-	1.2 ⁽⁷⁾	0.20	-	10 ⁻⁸ ppt
Xe	132	58.3	1.3	0.20	-	87 ppb ⁽⁴⁾
SF ₆	146	21.5	1.0	0.007	22800	6.4 ppt ⁽⁸⁾
R134a	102	5.7	1.0 ⁽⁹⁾	0.21	1370	50 ppt ⁽⁸⁾

* Global Warming Potential at 100 years : relative measure of how much energy a greenhouse gas traps in the atmosphere compared to CO₂, and calculated over 100 years. From WMO (2010).

⁽¹⁾ NIST (2013) ⁽²⁾ AirLiquide (2013), ⁽³⁾ Jodar *et al.* (2011), ⁽⁴⁾ Ozima et Podosek (2002), ⁽⁵⁾ Croizé *et al.* (2010), ⁽⁶⁾ Marrero et Mason (1972), ⁽⁷⁾ Tanner (1964), ⁽⁸⁾ WMO (2010), ⁽⁹⁾ Montzka *et al.* (2010).

sol sont directement à l'interface entre la géosphère et l'atmosphère. Les trois domaines ainsi définis sont soumis à des forçages de natures et d'intensités différentes, et ont donc des dynamiques des gaz différentes.

3.1.1 Gaz et moyens de mesures utilisés

Dans les différents ouvrages d'observation mentionnés ci-dessus, on s'intéresse à plusieurs gaz dont les caractéristiques sont listées dans le Tableau 3.1. On distingue d'abord les gaz qui sont présents naturellement dans l'atmosphère, du plus abondant au moins abondant : CO₂, He, Xe, Rn. Le radon-222 est un gaz radioactif de période de 3,8 jours, issu de la désintégration du radium-226. L'hélium est un gaz rare qui possède 2 isotopes stables. L'hélium-3, isotope rare, est issu du dégazage du manteau terrestre. Une source artificielle d'hélium-3 provient de la décroissance radioactive du tritium. L'hélium-4, isotope ultra-majoritaire, est plus abondant dans la croûte terrestre que dans les autres grands réservoirs de notre planète (atmosphère et manteau) en raison des désintégrations alpha (noyaux d'hélium-4) des séries de l'uranium et du thorium, elles-mêmes plus abondantes dans la croûte (Ozima et Podosek, 2002). Le xénon est un gaz rare qui provient du dégazage précoce lors de la formation de la Terre (Ozima et Podosek, 2002; Shcheka et Keppler, 2012). Il possède 9 isotopes stables.

On s'intéresse ensuite à deux autres gaz, SF₆ et R134a (molécule de la famille des fréons, encore appelée HFC-134a, norfluorane ou 1,1,1,2 tétrafluoroéthane, de formule CH₂F-CF₃) qui présentent des concentrations atmosphériques de l'ordre de la ppt (10⁻¹²). En effet, ils n'ont quasiment pas de source naturelle (Harnisch et Eisenhauer,

1998; McCulloch *et al.*, 2003), et sont uniquement issus de l'activité industrielle. La concentration en R134a dans l'atmosphère est cependant en forte augmentation (environ 10 % par an), du fait de l'utilisation croissante de ce fréon comme fluide frigorigène, en remplacement d'autres types de fréons qui détruisent la couche d'ozone. SF_6 et R134a sont des gaz à effet de serre (Tableau 3.1). A ce titre, l'utilisation de R134a est réglementée et des solutions de substitutions par des molécules à pouvoir de réchauffement global plus faible sont à l'étude (WMO, 2010). Les quantités de ces deux molécules utilisées dans le cadre de cette thèse restent cependant négligeables. Ces deux gaz n'ont pas d'effet sur la couche d'ozone. Comme on l'a vu en Section 1.2, les propriétés de ces deux gaz (quasi-absence de source naturelle, ligne de base extrêmement faible, limite de détection très basse), en font de bons traceurs. Ils sont utilisés en particulier pour des mesures de ventilation (Ricciardi *et al.*, 2008). L'utilisation du SF_6 pour mesurer la ventilation du tunnel du Laboratoire Naturel de Roselend a été présentée en Partie 1.3.

Quelques propriétés physico-chimiques des traceurs sont présentées dans le Tableau 3.1. Ces propriétés sont à prendre en compte pour les différents modes de transport en zone non saturée. La solubilité du CO_2 dans l'eau est un ordre de grandeur supérieure à celle des autres gaz, mais ces valeurs restent faibles. La dissolution des gaz et leur transport sous forme dissoute seront ici négligés. L'hélium se distingue par un coefficient de diffusion 5 à 7 fois plus élevé que ceux des autres gaz considérés. L'association de l'hélium et d'un autre traceur permettrait ainsi d'identifier si la diffusion joue un rôle dans le transport. Enfin, on peut remarquer que quatre gaz sont condensables (SF_6 , R134a, CO_2 , Xe), avec des pressions de vapeur saturante qui sont faibles. Ils sont conditionnés en bouteille sous forme liquide, et se vaporisent lors de la détente, qui est endothermique. Lors de l'utilisation de ces gaz, il est important d'avoir un apport de chaleur suffisant pour assurer ce passage sous forme gazeuse, notamment dans les circuits d'injection et de mesure de débit.

Pour les gaz CO_2 et He, on s'est intéressé en plus aux différents isotopologues (cf Tableau 3.1). L'étude des compositions isotopiques est un outil puissant pour identifier les origines de ces gaz, naturelles ou artificielles. C'est aussi une façon de bénéficier d'une ligne de base très basse, comme dans le cas de l'hélium-3 (Tableau 3.1). A terme, les différents isotopes stables du xénon seront également analysés, ce qui pourrait permettre d'identifier la présence d'un éventuel fractionnement isotopique lors du transport.

Les moyens de mesure utilisés pour les différents traceurs sont présentés dans l'Annexe E. Un des points forts du Laboratoire Naturel de Roselend, depuis plus de 15 ans, réside dans le suivi à long terme et à haute résolution des paramètres du milieu. Un tel suivi est nécessaire à la compréhension des évolutions transitoires et de leurs forçages, qui demande de mettre en regard différentes observations variables dans le temps. Le suivi des concentrations en gaz a ainsi été mis en place en s'attachant autant que possible à avoir des mesures avec un pas de temps inférieur ou égal à une heure. Les instruments de mesure utilisés doivent être choisis pour être robustes, autonomes et stables.

L'analyse des gaz de sub-surface peut se faire soit *in situ*, soit déportée. Dans le premier cas, le capteur doit être placé directement dans le volume d'air à analyser. Dans le cas des forages, le capteur doit être placé dans un cylindre dont le diamètre est compris entre 86 et 101 mm, et doit donc avoir une forme et des dimensions adaptées. C'est le cas pour le radon, qui a ainsi été mesuré par les capteurs BMC2 (Algade) dans les différents forages obturés, dans la chambre et le tunnel. Dans le second cas, le plus

fréquent, l'air à analyser est prélevé par une pompe, et circule dans la cellule de mesure de l'instrument. Selon les instruments, le flux d'air est assuré soit en continu, soit à intervalles réguliers pendant une durée limitée. L'étanchéité de la ligne de mesure doit alors être assurée, pour qu'il n'y ait pas de contamination par l'air extérieur.

L'analyse de la composition isotopique des gaz, CO_2 , He et Xe, demande une très grande précision et est réalisée par spectrométrie de masse haute résolution au laboratoire. Les mesures se font alors sur des échantillons de gaz de petit volume (environ 10 mL), prélevés dans les différents forages et dans la chambre et mis en légère surpression pour éviter toute contamination par l'atmosphère. L'analyse de chaque échantillon au laboratoire est longue, et le nombre de mesures est donc limité.

Ces dernières années, de nouvelles technologies voient le jour, qui permettent de réaliser des mesures de composition isotopiques en continu directement sur le terrain, avec une résolution temporelle inaccessible jusqu'alors (Baer *et al.*, 2002; Tuzson *et al.*, 2008; Sturm et Knohl, 2010). De nombreux tests et développements sont cependant nécessaires pour obtenir des mesures précises (Wen *et al.*, 2013). Durant cette thèse, l'analyse de la composition isotopique du CO_2 par spectroscopie laser infrarouge (Isotope Ratio Infrared Spectroscopy, IRIS) a été développée et utilisée. Le développement de l'analyse des compositions élémentaires et isotopiques des gaz rares, et en particulier du xénon, par Process Mass Spectrometry a également été initié.

3.1.2 Séparation des phases air et eau

L'analyse des gaz de l'air doit tenir compte de la présence d'eau, sous forme de vapeur voire de phase liquide. La présence de vapeur d'eau perturbe les mesures, en s'adsorbant sur les parois des tubes et des instruments, et en créant des effets mémoire (Leckrone et Hayes, 1998). La vapeur d'eau présente des raies d'absorption dans l'infrarouge, et doit donc être prise en compte pour les mesures effectuées par absorption (spectrométrie photo-acoustique, IRIS) (Friedrichs *et al.*, 2010). Enfin, si de l'eau liquide est présente dans un forage, les instruments la pompent au lieu de l'air, ce qui entraîne des dommages importants (dépôts, corrosion).

Différents outils ont été développés pour apporter des solutions à la présence possible d'eau dans l'air analysé. Un premier dispositif permet de sécher l'air humide. Il est constitué de 2 membranes de type Nafion (séries PD et ME, Perma Pure) perméables uniquement à la vapeur d'eau. Les 2 membranes sont montées en série, et baignent respectivement dans un contre-flux d'air sec et dans un gel de silice, qui absorbent l'humidité de l'air. Elles sont représentées en Figure 3.1. Le dispositif, réalisé sur notre demande par la société EIF Filters, est intégré dans une valise, compacte et facile à installer sur le terrain. Il a été utilisé pour la mesure de l'air du tunnel par spectroscopie laser et pour la mesure de l'air du forage SCH1 par spectroscopie photo-acoustique. Avec ce dispositif, la teneur en vapeur d'eau est réduite d'un facteur 10, passant de plus de 10 000 ppm à environ 1 000 ppm d'eau. Les gaz de calibration, initialement secs, passent également par le dispositif. Ils acquièrent ainsi environ 1 000 ppm de vapeur d'eau, et sont ensuite analysés dans les mêmes conditions que les échantillons.

En cas de présence d'eau sous forme liquide, ce dispositif n'est pas efficace. Une solution permettant de protéger les analyseurs d'une arrivée accidentelle de liquide consiste

à intercaler en amont un cylindre contenant une pastille constituée d'une matière qui gonfle en présence d'eau liquide, et colmate l'orifice de circulation du gaz. Installée en amont de l'analyseur, cette pastille agit comme un fusible et empêche tout débit de fluide (eau et air) dès qu'une goutte d'eau arrive. Ce dispositif (Stop-eau, EIF Filtres) est peu onéreux et très facile à mettre en œuvre, même s'il ne permet de stopper que de faibles quantités d'eau. Il a été utilisé pour le suivi des forages de surface par spectroscopie photo-acoustique.

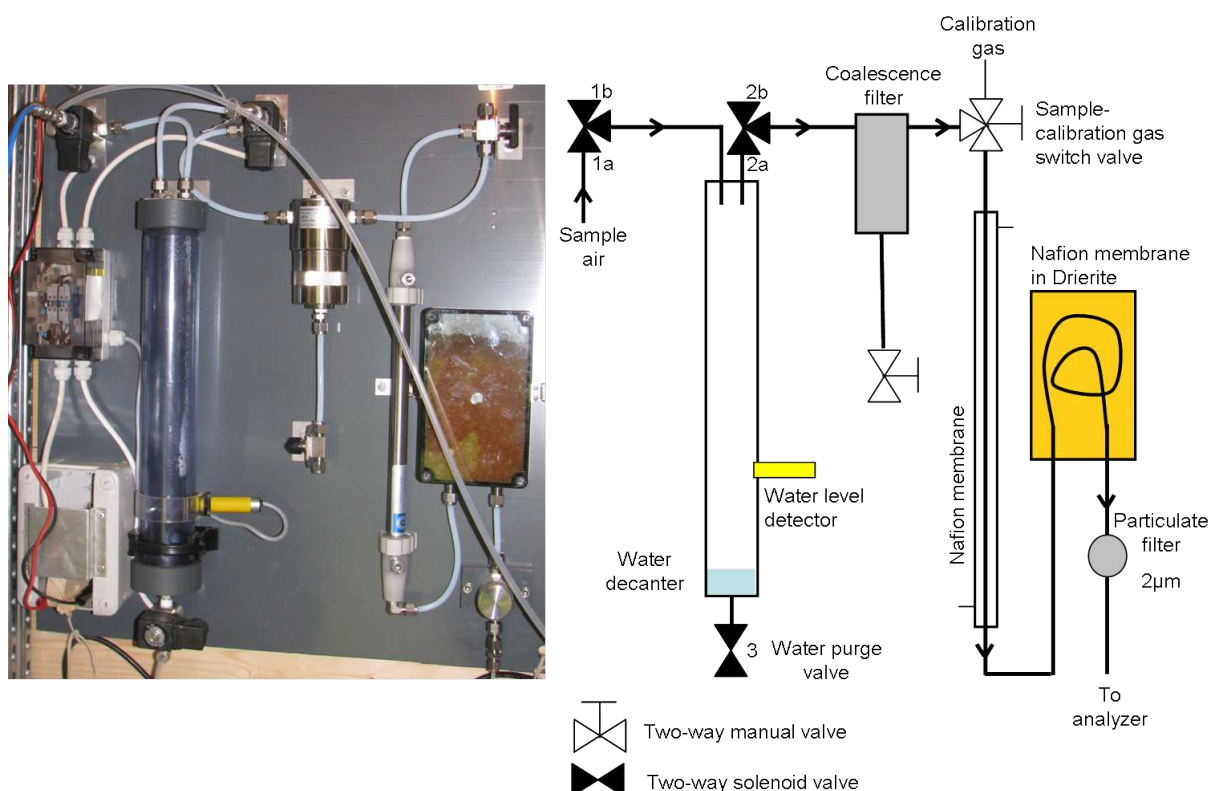


FIGURE 3.1 – Dispositif de séparation des phases eau et air et de séchage de l'air avant analyse. A gauche, photo du dispositif réalisé sur notre demande par EIF Filtres ; à droite, schéma du dispositif. Lorsque le niveau d'eau dans le pot de décantation atteint le niveau du détecteur, l'électrovanne 3 s'ouvre et l'électrovanne 1 passe sur la position 1b pour créer une arrivée d'air et évacuer l'eau, l'électrovanne 2 passe sur la position 2b pour alimenter l'analyseur avec l'air de la pièce. Les gaz de calibration peuvent être introduits au niveau de la vanne trois voies manuelle après l'étape de décantation-colaléscence.

FIGURE 3.1 – *Water-air separation and air drying device. Left : photo of the device assembled by EIF Filtres ; right : diagram of the device. When the water level in the decanter reaches the detector, solenoid valve 1 opens and solenoid valve 1 switches to 1b to let air enter and evacuate the water, solenoid valve 2 switches to 2b to provide room air to the analyzer. Calibration gases can be introduced through the 3-way manual valve, after the decantation-coalescence step.*

Un dernier dispositif a été conçu pour une analyse en continu et sur le long terme d'un forage pouvant contenir de l'eau liquide en quantités plus importantes. Ce dispositif est présenté en Figure 3.1. Un vase de décantation sépare d'abord les phases eau et air. Quand le niveau d'eau dans le vase dépasse un certain seuil, un dispositif de reconnaissance optique déclenche l'ouverture d'électrovannes pour vider l'eau liquide et

pour alimenter l'analyseur avec l'air ambiant. En aval, un filtre à coalescence stoppe les éventuelles micro-gouttelettes d'eau. Puis un ensemble de membranes sèches telles que décrites ci-dessus permet d'évacuer l'eau sous forme vapeur et de sécher le gaz. Un filtre à particules permet enfin de protéger l'analyseur. Ce dispositif n'a pour le moment été utilisé au Laboratoire Naturel de Roselend qu'à l'état de test.

Les débits d'eau dans les différents forages de la paroi du tunnel (Perm) et de la carrière (SC) ont été déterminés, afin d'écarter les forages qui se remplissent d'eau trop rapidement. Les forages qui ne se remplissent pas trop vite d'eau ont été instrumentés pour le suivi des concentrations en gaz, en utilisant un des deux premiers dispositifs présentés ci-dessus, pour protéger les instruments et pour limiter la quantité de vapeur d'eau lors de la mesure.

Dans le forage sub-horizontale SCH1, un obturateur gonflable a été installé à son extrémité basse (du côté du lac). L'eau d'infiltration s'accumule au-dessus de cet obturateur. Le niveau d'eau est mesuré grâce à un capteur piézométrique (Diver, Schumberger Water Service). Pendant les 2 ans qu'a duré le suivi, le niveau d'eau dans le forage SCH1 est resté inférieur à 2 m, ce qui correspond à l'enneigement de la moitié de l'intervalle de mesure délimité par les 2 obturateurs. Le prélèvement d'air est réalisé à l'extrémité supérieure de l'intervalle de mesure, et ne risque donc pas d'être contaminé par de l'eau liquide.

3.1.3 Composition de l'air de la chambre et des forages

La chambre, isolée par le mur étanche, et les forages, isolés par des obturateurs gonflables, sont des volumes finis isolés de l'atmosphère. Pour l'analyse déportée des concentrations en gaz, deux configurations des lignes de mesure ont été utilisées : en circuit ouvert ou en boucle fermée. Je discute ici des avantages et des inconvénients de chacune des deux méthodes. Quelle que soit la méthode utilisée, les lignes de mesure des gaz sont constituées de tubes et de tuyaux, qui doivent être neutres vis-à-vis des gaz utilisés. Les matériaux utilisés ont été le téflon et l'acier inoxydable.

L'analyse en circuit ouvert est la plus courante et la plus facile à mettre en œuvre. Une pompe, intégrée à l'instrument ou placée en aval, échantillonne l'air via des tubes qui traversent l'obturateur gonflable ou le mur étanche, le fait circuler dans l'instrument où la mesure est réalisée, puis le rejette dans l'atmosphère. Les concentrations en CO_2 , SF_6 et R134a sont mesurées de cette manière dans le forage SCH1 par spectroscopie photo-acoustique. Il existe cependant deux inconvénients majeurs à cette méthode. Le prélèvement d'air, qu'il soit continu ou intermittent, est réalisé par une pompe. Si le milieu est peu perméable, le débit de pompage d'air est supérieur au débit d'air que le milieu peut fournir pour compenser le prélèvement, et la chambre ou le forage passent en dépression. L'intensité du flux de gaz produit par la roche est altérée par cette dépression. Si la dépression devient importante, il n'y a plus d'air à analyser, et la pompe ne peut plus fonctionner. Inversement, si le milieu est fortement perméable, un débit de pompage d'air important va drainer tout l'air contenu dans la roche, et l'air atmosphérique va finir par contaminer le volume du forage. La plupart des forages Perm et SC ne peuvent ainsi pas être analysés par cette méthode car ils passent et restent en dépression, l'air ne peut plus en être extrait pour être mesuré dans l'analyseur.

Si l'air de la chambre était analysé de cette façon, il serait évacué dans le tunnel après analyse, or les concentrations de tous les gaz sont plus élevées dans la chambre que dans le tunnel. Les autres mesures de concentration faites dans le tunnel seraient alors faussées. Il est en effet impossible d'évacuer l'air analysé à l'extérieur du tunnel sans réaliser de perturbation. La composition de la chambre n'est donc pas analysée en circuit ouvert.

Dans la mesure du possible, les gaz sont analysés avec un circuit de mesure fermé, en réinjectant l'air prélevé dans le forage ou dans la chambre, après analyse. Dans cette configuration, il faut considérer la possibilité de fuites et/ou de contaminations dans la ligne de mesure. Il n'est pas possible d'assurer une étanchéité parfaite de la ligne de mesure, car les pompes de circulation de gaz (pompes à membrane) et certains instruments en eux-mêmes (cellules de mesures, vannes, ...) ne sont pas parfaitement étanches. Les taux de fuite des lignes de mesure ont été quantifiés, et sont suffisamment faibles pour que les contaminations soient négligeables. L'Annexe F détaille les méthodes et les résultats obtenus pour les taux de fuite des lignes de mesure. Les mesures de flux de CO_2 dans les forages Perm avec les analyseurs infrarouge LI-820 (Li-Cor Biosciences) et CCIA DLT-100 (Los Gatos Research) ainsi que le suivi de la chambre C de 2010 à 2012 avec l'analyseur photo-acoustique Innova 1412 (LumaSense) ont ainsi été réalisés en boucles fermées.

Pour finir, en raison du nombre important de forages à mesurer et du nombre limité d'instruments, des systèmes de multiplexage sont nécessaires pour pouvoir analyser successivement les différents forages avec un seul instrument. Dans le cas où l'instrument prélève et analyse le gaz en continu, le système de multiplexage permet l'analyse d'un gaz standard, d'un blanc ou de l'air atmosphérique entre deux analyses de forages ou de la chambre, afin de ne pas épuiser le volume, limité, de ces réservoirs.

3.1.4 Flux de gaz du sol

A l'interface entre la géosphère et l'atmosphère, les piézomètres et les forages courts permettent d'analyser l'air des deux premiers mètres sous la surface, alors que des chambres d'accumulation posées au sol mesurent les flux nets de gaz produits en surface.

On s'intéresse ici à des flux de gaz diffusifs, dus au gradient de concentration entre le sol, où la concentration en gaz est élevée et quasi-constante, et l'atmosphère, où la concentration reste faible.

Il existe différentes méthodes pour mesurer les flux de gaz du sol (Norman *et al.*, 1997). Dans le cadre de cette thèse, j'ai utilisé la méthode de la chambre d'accumulation (Welles *et al.*, 2001), facile à mettre en œuvre et relativement peu onéreuse. Cette méthode consiste à mesurer l'augmentation de la concentration en gaz dans un volume d'air isolé au dessus du sol, comme illustré en Figure 3.2. La valeur du flux Φ_{Gaz} (en $g \cdot m^{-2} \cdot s^{-1}$) est calculée d'après Chiodini *et al.* (1998) à partir de la pente à l'origine de la courbe de croissance de la concentration $\frac{d[Gaz]}{dt}$ (en s^{-1}) :

$$\Phi_{Gaz} = \frac{P_{atm} M_{Gaz}}{RT} \frac{V}{S} \left(\frac{d[Gaz]}{dt} \right)_{t \rightarrow 0} \quad (3.1)$$

où P_{atm} est la pression atmosphérique (en Pa), M_{Gaz} la masse molaire du gaz (en

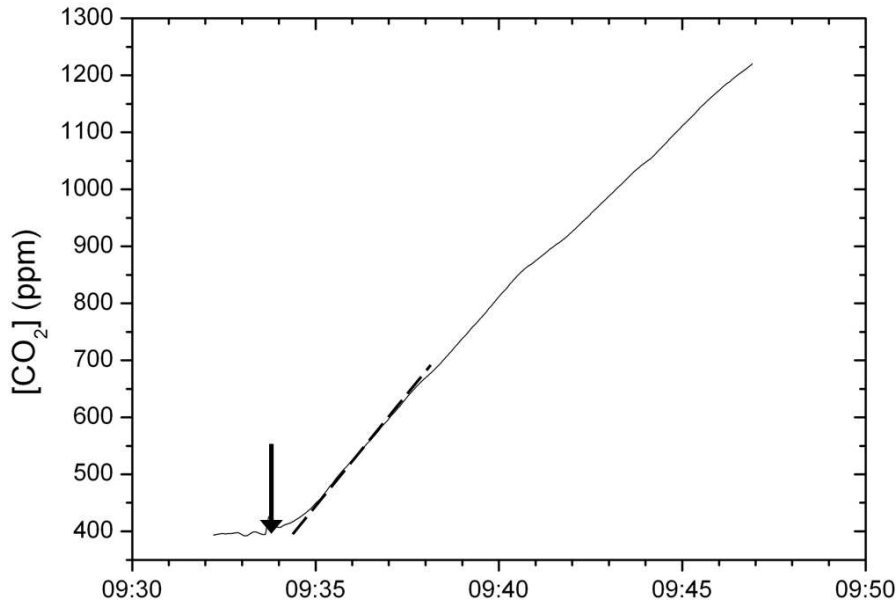


FIGURE 3.2 – Courbe d’accumulation du CO_2 mesurée sous une cloche au sol de la carrière. La flèche indique la fermeture de la cloche et le début de l’accumulation. La courbe tiretée correspond à la pente à l’origine, utilisée pour le calcul du flux.

FIGURE 3.2 – CO_2 accumulation measured under a chamber on the soil of the quarry. The arrow indicates chamber closing and the beginning of the accumulation. The dashed line corresponds to the slope used to calculate the flux.

$g \cdot mol^{-1}$), R la constante des gaz parfaits, T la température ambiante (en K), V le volume de la chambre d’accumulation (en m^3) et S la surface de sol délimitée par la chambre (en m^2). Le flux peut être négatif, s’il y a une consommation nette du gaz dans le sol, ce qui peut être le cas pour le méthane CH_4 qui est oxydé en CO_2 (Ullah et Moore, 2011).

La concentration en CO_2 dans la chambre est mesurée avec un analyseur infrarouge (LI-820 ou LI-8100, Li-Cor Biosciences), l’activité volumique en ^{222}Rn par prélèvements et comptage par photomultiplicateur en foies scintillantes (CALEN, Algade) ou avec une chambre d’ionisation (AlphaGuard, Saphymo). Pour que le flux mesuré soit représentatif du flux réellement produit par le sol en conditions naturelles, il est important que la chambre ne perturbe ni le gradient de concentration ni les paramètres physiques du sol (température, teneur en eau). La durée de la mesure doit également être limitée, entre 15 min et quelques heures selon le gaz et l’intensité du flux, car l’accumulation du gaz dans la chambre diminue le gradient de concentration jusqu’à l’annuler, et car la fermeture de la chambre modifie la température et la teneur en eau du sol dans la zone mesurée. Dans le cas du CO_2 la production biologique est altérée et la mesure n’est plus représentative des conditions naturelles.

Le système présenté en Figure 3.3 est une chambre automatisée, construite pour la mesure du flux de CO_2 à intervalles réguliers en tenant compte des contraintes énoncées ci-dessus. Une ligne de mesure a été ajoutée en parallèle de l’analyseur de CO_2 , qui comporte une chambre d’ionisation (AlphaGuard, Saphymo) pour la mesure de l’activité en ^{222}Rn , et un analyseur photo-acoustique (Innova 1412, LumaSense) pour la mesure

des concentrations en SF_6 , R134a et CH_4 . Le dispositif obtenu permet ainsi de suivre l'évolution temporelle des flux de ces différents gaz.

L'utilisation de chambres d'accumulation opaques pour la mesure du flux de CO_2 (Figure 3.3) empêche la photosynthèse, et le flux mesuré correspond à la production par la respiration des plantes et des bactéries du sol. Une chambre d'accumulation transparente donnerait en revanche le flux net de CO_2 .



FIGURE 3.3 – Chambres d'accumulations utilisées pour la mesure des flux de gaz du sol dans la carrière. A gauche : chambre d'accumulation automatique (LI8100, Li-Cor Biosciences) en position ouverte. A intervalles réguliers, la cloche blanche pivote et se referme automatiquement sur l'anneau bleu, inséré de quelques centimètres dans le sol et permettant une fermeture étanche. Le disque métallique à soufflet au sommet de la cloche assure l'équilibre des pressions. A droite : chambre d'accumulation classique pour une mesure ponctuelle. Dans les deux cas, deux tuyaux permettent la circulation de l'air de la chambre vers l'analyseur et le retour.

FIGURE 3.3 – Accumulation chambers used to measure soil gas fluxes in the quarry. On the left : automated accumulation chamber (LI8100, Li-Cor Biosciences) in open position. At fixed time intervals, the white dome rotates and closes automatically on the blue ring, which is inserted of few centimeters in the soil for tightness of the chamber. The metallic disc on top of the chamber allows pressure equilibrium. On the right : classical accumulation chamber for point measurement. In both cases, two tubes allow gas flow from the chamber to the analyzer and return.

3.1.5 Flux de gaz produits par la roche

Deux méthodes ont été utilisées pour quantifier le flux de gaz produit par la roche. La première méthode est celle de la chambre d'accumulation présentée précédemment. Un forage isolé de l'atmosphère par un obturateur gonflable ou la chambre C isolée par le mur étanche constituent en effet des chambres d'accumulation à plus grande échelle. Les concentrations en CO_2 et en radon étant généralement élevées dans les forages et dans la chambre, les volumes sont fortement concentrés en gaz et il est nécessaire de commencer par remplacer l'air du forage ou de la chambre par de l'air atmosphérique, ne contenant quasiment pas de CO_2 ni de radon. Pour la chambre, une turbine ($40\text{ m}^3/\text{min}$) assure le renouvellement de l'air, alors que les forages sont purgés avec de l'air comprimé débité

par un petit compresseur. Le volume d'air peut ensuite être isolé pour y mesurer les augmentations des deux gaz en boucle fermée. La valeur du flux est déterminée à partir de la pente initiale, selon l'Équation 3.1.

La deuxième méthode s'appuie sur le bilan des sources et puits des gaz. L'équation différentielle qui régit l'évolution de l'activité volumique en radon A (en $Bq \cdot m^{-3}$) dans le tunnel est :

$$\frac{dA}{dt} = \Phi_{Rn} \frac{S}{V} - (\lambda + \lambda_V)A \quad (3.2)$$

où Φ_{Rn} est le flux d'émanation en radon (en $Bq \cdot m^{-2} \cdot s^{-1}$), S (resp. V) la surface des parois (resp. le volume) du tunnel, λ la constante de désintégration du radon et λ_V la constante de temps de la ventilation du tunnel (déterminée en Section 1.3).

Alors que dans la première méthode, les termes de désintégration et de ventilation sont négligés aux temps courts, dans la deuxième méthode les temps longs et l'état stationnaire sont considérés. Le flux est alors estimé par :

$$\Phi_{Rn} = A_{\infty}(\lambda + \lambda_V) \frac{V}{S} \quad (3.3)$$

où A_{∞} est l'activité volumique du radon à l'équilibre dans le tunnel (hors période d'anomalie). Cette méthode s'applique également à la détermination du flux de CO_2 , pour lequel le terme de désintégration est absent.

Dans la chambre et dans les forages, la ventilation est absente. Le flux de ^{222}Rn peut être déterminé de la même manière à partir de son activité à l'équilibre. Le flux de CO_2 n'étant plus compensé par aucun puits, la concentration en CO_2 augmente linéairement, jusqu'à se stabiliser après un temps très long, à la concentration de la porosité de la roche. La deuxième méthode n'est alors plus applicable.

3.2 Hétérogénéité spatiale des productions de CO_2 et de ^{222}Rn

Au Laboratoire Naturel de Roselend, il a été montré que le CO_2 et le ^{222}Rn sont naturellement produits par les roches (Section 1.3). Le flux de radon produit par les parois du tunnel a été mesuré directement par chambre d'accumulation, et indirectement à partir de l'activité en radon mesurée dans le tunnel (Richon *et al.*, 2005). Ces deux méthodes peuvent également être utilisées pour mesurer le flux de CO_2 dégagé par les roches.

Pour comprendre la dynamique naturelle des gaz dans la zone non saturée, la connaissance des flux de gaz, de leur variabilité et des paramètres qui les contrôlent est un élément nécessaire. Pour compléter les mesures déjà existantes, j'ai déterminé les flux de CO_2 et de ^{222}Rn dans la chambre et dans les différents forages, réalisés depuis 2009. Les valeurs de flux sont obtenues soit avec l'Équation 3.1 et des mesures d'accumulation dans la chambre ou les forages isolés, soit avec l'Équation 3.3 et une mesure de concentration à l'état stationnaire. Les résultats obtenus pour les flux de CO_2 et de ^{222}Rn produits par la roche et par le sol sont récapitulés dans le Tableau 3.2. Les flux et les concentrations de CO_2 et de ^{222}Rn montrent une variabilité importante, à la fois

TABLEAU 3.2 – Synthèse des flux Φ de CO_2 et de ^{222}Rn produits par les roches et des concentrations à l'équilibre $[CO_2]^\infty$ et Rn^∞ obtenus au Laboratoire Naturel de Roselend dans cette étude.

TABLE 3.2 – Summary of CO_2 and ^{222}Rn fluxes Φ produced by the rocks and equilibrium concentrations $[CO_2]^\infty$ and Rn^∞ obtained at the Roselend Natural Laboratory in this study.

	CO_2		^{222}Rn	
	$[CO_2]^\infty$ (ppm)	Φ_{CO_2} ($g \cdot m^{-2} \cdot day^{-1}$)	Rn^∞ ($kBq \cdot m^{-3}$)	Φ_{Rn} ($mBq \cdot m^{-2} \cdot s^{-1}$)
Sol	40000	3 - 45	10 - 40**	1 - 25
SC 4	580 - 1000	-	6 - 55	0.3-3
SC 6	10000 - 15000	0.02	-	-
SC 7	15000 - 25000	0.03	15	0.8
SC 9	28000	0.6	200 - 600	10 - 30
SC 10	-	-	40 - 90	2 - 5
SCH1	15000 - 30000	0.02 - 0.3	200 - 700	10 - 35
Perm 1	NA	-	1.7 - 3	0.08
Perm 3	NA	-		
Perm 4	NA	0.1	1.9	0.1
Perm 5	NA	0.9	-	1
Perm 6	NA	0.1	-	6
Perm 7	NA	0.2	70 - 110	4
Perm 8	NA	-	-	1.5
Perm 10	NA	3.5	-	0.8
Chamber	NA	0.1	1.7 - 2	2
Tunnel	450 - 600	0.3	0.3 - 0.8*	3*

NA : not applicable, as concentration is supposed to increase continuously

* from Richon *et al.* (2005)

** from Perrier *et al.* (2009)

spatiale et temporelle (entre plusieurs mesures effectuées dans une même structure). Une forte hétérogénéité a aussi été observée pour les valeurs de perméabilité (Chapitre 2 et Guillon *et al.*, 2013), et qui pourrait en partie expliquer les variations des flux de gaz. Les concentrations et flux importants en radon sont le plus souvent associés à des concentrations et des flux en CO_2 élevés, ce qui indique un contrôle par la perméabilité de la roche ou par les forçages météorologiques (température, pression, flux d'eau), et une moindre importance des forçages biologiques.

3.3 Contrôles de la dynamique naturelle des gaz en zone non saturée

Trois gaz, SF_6 , CO_2 et ^{222}Rn , ont été mesurés en continu dans le tunnel et dans la chambre C depuis 2011. CO_2 et ^{222}Rn sont naturellement produits par la roche. Ces deux gaz étaient connus pour présenter des anomalies transitoires de concentration dans le tunnel (cf. Section 1.3). SF_6 peut être considéré comme présent partout suite à une

première injection dans la chambre en 2011 puis une seconde injection plus importante en 2013, pour les expériences de traçage (cf Chapitre 4). Ce suivi a permis de comprendre les valeurs et les évolutions des lignes de base de ces trois gaz, et de préciser les processus mis en jeu lors des anomalies. Les résultats du suivi réalisé début 2012 sont présentés sous forme d'article. J'ai ensuite complété ces résultats d'une part en réalisant des simulations numériques pour interpréter de façon plus quantitative la ligne de base des gaz dans le tunnel, et d'autre part avec un autre jeu de données acquis en 2013 pour une autre anomalie .

3.3.1 *Controls on gas baseline concentrations and anomalies in the unsaturated zone (article)*

Le contenu de cette section fait l'objet d'un article qui a été soumis à Journal of Hydrology. Le suivi simultané de trois gaz, CO_2 , SF_6 et ^{222}Rn , dans la chambre isolée et dans le tunnel, permet d'identifier les processus qui contrôlent leurs évolutions temporelles. La ligne de base de ces trois gaz est contrôlée par le bilan de matière de leur production et leur disparition, avec une modulation par l'advection créée par les fluctuations de la pression atmosphérique. Cette modulation est particulièrement bien mise en évidence pour le SF_6 dont la ligne de base est négligeable.

Les anomalies des concentrations de ces trois gaz qui sont régulièrement observées dans le tunnel et dans la chambre font intervenir d'autres mécanismes. Dans cet article, on montre que les augmentations de concentrations sont dues à un flux d'air accru, créé par une augmentation du gradient de pression et non à une augmentation de la perméabilité. Suivant le modèle proposé par Richon (2011), cette augmentation de pression est causée par les effets couplés de l'infiltration de l'eau de fonte des neiges et de la montée de la nappe.

Controls on gas baseline concentrations and anomalies in the unsaturated zone

Sophie Guillon^{1,2,*}, Eric Pili^{1,2}, Roger Sestier-Carlin³, Pierre Agrinier²

* Corresponding author. sophie.guillon@cea.fr; +33 6 76 52 73 49

Address: CEA, DAM, DIF, F-91297 Arpajon France

Affiliations

¹ CEA, DAM, DIF, F-91297 Arpajon, France

sophie.guillon@cea.fr; eric.pili@cea.fr

² Institut de Physique du Globe de Paris, Sorbonne Paris Cité, Univ Paris Diderot, UMR 7154 CNRS, F-75005 Paris, France

agrinier@ipgp.fr

³ IRSN, Institut de Radioprotection et de Sûreté Nucléaire, BP68 Centre de Saclay, F-91192 Gif-sur-Yvette, France

roger.sestier-carlin@irsn.fr

Abstract

Spatial and temporal variability of gas concentrations in the unsaturated zone results from a combination of sources, sinks and transport mechanisms. Baseline concentrations are thus highly dynamic, which renders difficult any type of monitoring and particularly detection of leakages or control of the evolution of sites contaminated by volatiles. In the Roselend Natural Laboratory (French Alps), a sealed cavity at 55 m depth allows to study gas dynamics in the unsaturated zone. SF₆, CO₂ and ²²²Rn were continuously monitored in the adjacent tunnel as well as in the sealed cavity. These three gases have different sources and sinks that control their distributions in the unsaturated zone. Their baseline concentrations are modulated by barometric pressure fluctuations. While this is clearly apparent for SF₆, this modulation is masked for CO₂ and ²²²Rn by their productions in the rock matrix. Every year, several transient gas anomalies are measured in the tunnel. These transient anomalies cannot result neither from an increase in the gas source nor from an increase in permeability. Gas anomalies are caused by a rapid increase in the pore pressure related to water movements. This confirms a hydrological mechanism recently identified as the cause of ²²²Rn anomalies in the Roselend tunnel.

Keywords: CO₂, ²²²Rn, baseline, unsaturated zone, advection, infiltration

1. Introduction

Understanding gas dynamics in the unsaturated zone is essential for multiple reasons, ranging from the fundamental understanding of this three-phase system to monitoring programs for leakage detection. Indeed, the gas phase is seldom considered on its own in the unsaturated zone (Evans, 2001). Monitoring programs are needed to assess the integrity of deep CO₂ sequestration (Beaubien et al., 2013; Cohen et al., 2013; Lewicki et al., 2010), the safety of nuclear waste disposal (Sullivan and Pescatore, 1994), as well as the natural attenuation and remediation of contaminants in the subsurface (Balcke et al., 2007). Climate change research is also interested in Earth-atmosphere gas exchange (Weisbrod et al., 2009), the consequences of permafrost evolution (Groffman et al., 2013) or the changes of greenhouse gas fluxes (Ullah and Moore, 2011). Finally, in the quest of precursory signals associated with natural hazards, a thorough understanding of mechanisms controlling ²²²Rn dynamics is required before any prediction is possible (Toutain and Baubron, 1999; Trique et al., 1999), while understanding radon dynamics in

houses is also of importance for health issues (Tanner, 1993). All these domains require detection capabilities, hence the recognition that some measured concentrations are significantly different from a baseline.

The Roselend Natural Laboratory (France) is an underground research laboratory where more than 15 years of monitoring and experiments helped understanding water and air flow in the unsaturated zone (Guillon et al., 2013; Patriarche et al., 2007; Perrier et al., 2005; Pili et al., 2008; Pili et al., 2004; Provost et al., 2004; Richon et al., 2005, 2009; Trique et al., 1999; Wassermann et al., 2011). Here we monitored three gases of interest, namely SF₆, CO₂ and ²²²Rn. Independently, these gases are commonly reported in the literature because they are useful tools to understand transport processes and they are easily measured in the field (Batiot-Guilhe et al., 2007; Boreham et al., 2011; Jodar et al., 2011; Kowalczyk and Froelich, 2010). They have different sources, sinks and distributions in the unsaturated rocks. CO₂ and ²²²Rn are naturally produced in the soils and rocks, while SF₆, at the levels monitored here, is of artificial origin. These two naturally produced gases are monitored in caves where their dynamics is often related to ventilation (Baldini et al., 2006; Batiot-Guilhe et al., 2007; Kowalczyk and Froelich, 2010; Perrier and Richon, 2010). Here, we combined simultaneous monitoring of these two naturally produced gases with that of SF₆ a gas without any source, therefore expected to have a more simple behavior. The concentrations of these three gases, hence the sensitivity needed for their measurement, cover more than 10 orders of magnitude from 10⁻¹⁴ ppm for ²²²Rn, 0.01 to 1 ppm for SF₆, up to 10⁴ ppm for CO₂.

This paper is organized as follows. The Roselend experimental site is described in Section 2. Section 3 presents the theoretical baseline concentrations of the three studied gases in the unsaturated zone. The experimental methods used for gases monitoring are detailed in Section 4. The results obtained for gas baselines and anomalies in the tunnel as well as in the sealed cavity are presented in Section 5. The mechanisms controlling gas dynamics in the unsaturated zone and the observed spatial and temporal variability are discussed in Section 6.

2. The Roselend Natural Laboratory

The Roselend Natural Laboratory is located in the South-East of France, 25 km South-West of Mont-Blanc. It belongs to the External Crystalline Massif of the Western Alps. The Roselend Natural Laboratory, presented in Figure 1, is composed of a dead-end horizontal tunnel at an elevation of 1576 m located below an abandoned quarry. The tunnel is 128 m long and ca. 2.4 m in diameter, with ca. 500 m³ internal volume. It is hosted in fractured gneisses and micaschists and capped with the same rocks with an increasing thickness from 7 m at the entrance to 55 m at its closed end (Figure 1). The tunnel is located nearby the artificial Roselend lake, 19 m above the lake at its highest level. The lake water level is controlled by the electric power company depending on the power demand, with a yearly cycle with amplitudes from 70 to 140 m.

Hydrogeology of fractured crystalline aquifers is known to be complex (Stober and Bucher, 2000), with a large spatial heterogeneity of flow parameters and the dominant role of fractures and water conducting features over the matrix (Masset and Loew, 2010). Head measurements in two 100-meter deep wells (F1 and F2, Figure 1) located between the Roselend tunnel and the lake indicate that the water table is between 5 and 20 m below the tunnel. However, the location of the water table below the tunnel is not precisely known. Head measured in the F1 well follows the lake water level, whereas head measured in the F2 well accounts for recharge contributions (unpublished data). Indeed, sulfate, sodium and calcium concentrations in F2 water are twice lower than in F1 water.

Such low solute concentrations are a distinctive feature of short residence times of recharge water in fractures (Pili et al. 2004; Pili et al. 2008).

At the end of the tunnel, a 20-meter long cavity, whose surface and volume are 110 m² and 60 m³ respectively, is delimited since October 2010 by a concrete bulkhead designed to be air-tight, and equipped with a door and connecting plates (Figure 1). It is referred to as chamber C. Since the thickness of the Excavation Damaged Zone (EDZ) is approximately 1 m in the tunnel (Wassermann et al., 2011), the bulkhead is anchored by more than 1 m all around the tunnel section (ceiling, walls and floor). The chamber C is a good tool to sample and analyze gases inside the unsaturated fractured porous rocks, as it is not directly connected to the atmosphere, and as its large volume integrates both matrix and several fractures.

In order to perform a tracing experiment, 0.6 kg of SF₆ was introduced in the isolated chamber C in July 2011, leading to a peak concentration of 1000 ppm in the chamber. In the weeks following this injection, the chamber C was open and ventilated artificially during several hours.

Ten two-meter long horizontal boreholes drilled in the last 50 m of the tunnel wall (Figure 1, Perm 1 to 10), as well as ten ten-meter deep vertical boreholes drilled at the topographic surface, 55 m above the chamber, (Figure 1, SC1 to SC10), allow to monitor gases at various depth in the unsaturated zone.

Percolation through the rock massif is evidenced by water dripping from the tunnel roof. Large water fluxes coincide with the presence of large fractures (Pili et al., 2008). According to stereological analysis of fracture traces intersecting the tunnel and fracture network reconstruction, both small and large fractures are needed for the fracture network to percolate (Patriarche et al., 2007). Both air and water permeabilities of the crystalline rocks have been measured in the field at scales ranging from 1 to 55 m, and the obtained values are in the range 5×10^{-15} m² to 3×10^{-13} m² (Guillon et al., 2013; Patriarche et al., 2007; Pili et al., 2008; Wassermann et al., 2011). The air-filled porosity is estimated to lie between 0.2 and 5% (Guillon et al., 2013; Pili et al., 2008; Richon et al., 2005).

In the tunnel, the measured CO₂ baseline concentration is around 600 ppm and the ²²²Rn baseline activity is between 200 and 1200 Bq m⁻³ (Richon et al., 2009). These baseline conditions are observed 70% of the year. Baseline gas concentrations result from the balance between the production by the rock, the radioactive decay (in the case of radon) and the ventilation of the tunnel by atmospheric air (Perrier et al., 2005; Richon et al., 2005).

²²²Rn anomalies have been observed in the tunnel for more than 15 years (Pili et al., 2004; Richon et al., 2005; Trique et al., 1999). They occur four to eight times a year, simultaneously with CO₂ anomalies (Richon et al., 2009) and groundwater chemical anomalies (Pili et al., 2004). A generation mechanism coupled with the lake water level was first proposed to explain these anomalies by Trique et al. (1999): rapid lake water level changes create transient stresses that open some fractures and increase the pore pressure, therefore leading to flow of ²²²Rn-rich fluid. Indeed, values of strains due to variations of the lake water level (0.8×10^{-5}) are not negligible and are of the same order of magnitude than tectonic ones (10^{-5} , Pili et al., 2004). Pili et al. (2004) then showed that these anomalies result from transient increases in connectivity between the matrix porosity, where gases and solutes concentrations are high, and the conductive fractures.

3. Theoretical distribution and evolution of gases in the unsaturated zone

We systematically measured a set of three gases, SF₆, CO₂ and ²²²Rn, in chamber C and in the tunnel. These gases are here taken as representative for a gas with no production (SF₆), production only (CO₂), production and decay (²²²Rn). As summarized in

Figure 2, the theoretical baseline concentrations for each of these gases in the unsaturated zone and in chamber C can be determined from its sources and sinks and a mass balance equation. Atmospheric ventilation of the tunnel through the entrance door is a sink for all gases in the tunnel (Perrier et al., 2005; Richon et al., 2005). Ventilation is negligible in the isolated chamber C. SF₆ and ²²²Rn are inert, and at first order, CO₂ can also be considered inert in the crystalline rocks of the Roselend Natural Laboratory, where weathering and calcite precipitation are minor processes (Pili et al., 2009). The solubilities of these three gases are low (Fernandez Prini et al., 2003, Nazaroff, 1992) and therefore dissolution in water as well as degassing are neglected.

SF₆ has virtually no source in natural environments (Harnisch and Eisenhauer, 1998). In chamber C, SF₆ is thus characterized by the absence of any source or sink. The injection of SF₆ in chamber C in July 2011 is an artificial point source. This concentration does not appear in the mass budget equation, but has to be taken as an initial condition. Therefore the expected baseline concentration for SF₆ as a function of time is constant (Figure 2).

CO₂ is produced mainly in the soil layer by root respiration and microbial decomposition of organic matter. At the topographic surface, the soil layer is only 10 to 50 cm thick, on top of an embankment overlying the crystalline rocks (Pili et al., 2008). CO₂ concentration measured in the soil is between 0.5 and 3 %. In metamorphic rocks, another CO₂ source commonly comes from the dissolution of calcite by sulfuric acid produced by the dissolution of pyrite (Spence and Telmer, 2005). This additional geological source exists at the Roselend Natural Laboratory (Pili et al., 2009), because both calcite and pyrite are present as accessory minerals in the crystalline rocks. The CO₂ source is considered heterogeneous, as it is the sum of contributions from the soil and from the rocks. CO₂ concentration measured in the surface boreholes SC as well as in the tunnel boreholes Perm is between 1 and 3 %. For a constant production without any sink, the baseline concentration of CO₂ as a function of time is therefore expected to increase linearly (Figure 2).

²²²Rn is naturally produced in the rock matrix from ²²⁶Ra decay, and disintegrates with a half-life of 3.8 days, corresponding to a radioactive decay constant $\lambda = 2.1 \times 10^{-6} \text{ s}^{-1}$. ²²²Rn distribution is considered homogeneous in the unsaturated zone. Indeed radon emanation measured along the tunnel is homogeneous (Girault and Perrier, 2012). ²²²Rn activity measured in the surface boreholes SC is between 10 and 900 kBq m⁻³, and between 1 and 100 kBq m⁻³ in the tunnel boreholes Perm. This apparent heterogeneity is related to spatially variable fracture density. With a constant source and a sink, ²²²Rn concentration is expected to increase and reach a plateau, within a characteristic time determined by its half-life (Figure 2).

4. Experimental methods

4.1. Pressure and gas concentration monitoring

Pressure as well as SF₆ and CO₂ concentrations and ²²²Rn activity were continuously monitored in both the chamber C and in the tunnel at 100 m from its entrance. Stainless steel tubing in the lower connecting plate of the concrete bulkhead allowed to sample air from chamber C (Figure 1). Pressure was monitored in both chamber C and the tunnel with a 15 min time step using barometric pressure sensors (RPT 410, GE Sensing, accuracy 0.5 mbar) and a data logger (CR1000, Campbell Scientific). Pressure in the tunnel is equal to barometric pressure outside of the tunnel, which is recorded at the onsite weather station.

SF₆ and CO₂ concentrations were measured every hour using two Innova 1412 photo-acoustic field gas-monitors (LumaSense Technologies). SF₆ was measured using filter UA0988 with a measurement range from 6 ppb to 60 ppm, and CO₂ was measured using

filter UA0983 with a measurement range from 5 ppm to 5 %. These analyzers automatically compensate for moisture and pressure variations, and their factory calibration is stable over more than one year. Uncertainties are lower than 10 %. Each analyzer pumped air from the chamber or the tunnel into the analysis cell through 2 m of 4 mm outer diameter PTFE tubing. Volumetric activity of radon-222 was measured every hour by Barasol BMC2 probes (Algade) with a resolution of 50 Bq.m⁻³, as detailed in Richon et al. (2005). One probe was installed inside chamber C and another one in the tunnel at 100 m from the entrance.

4.2. CO₂ carbon isotope composition and CO₂ flux

In order to measure the carbon isotope composition of the CO₂ produced by the rock, a closed chamber flux measurement was conducted, following the methodology used for soil CO₂ flux measurement (Bowling et al., 2001). The chamber C, sealed and isolated from the tunnel, played the role of a closed accumulation chamber and CO₂ concentration inside the chamber was monitored. Simultaneously, two discrete air samples were taken every day from chamber C for CO₂ carbon isotope analysis, following a method commonly used for soil gas sampling (Breecker and Sharp, 2008). A stainless steel tube passing through the concrete bulkhead, and ended by a rubber septum was used for withdrawal of air from the chamber. Using a 50 mL air-tight syringe (Hamilton), we first flushed the tube by pulling 100 mL of air. Then we sampled 50 mL of air, from which 40 mL were used to flush a pre-evacuated septum-capped 12 mL sample vial (Labco Exetainer), and the last 10 mL to over-pressurize the sample vial, and thus ensure no atmospheric contamination. CO₂ carbon isotope composition relative to V-PDB standard, reported in ‰ with the $\delta^{13}\text{C}_{\text{CO}_2}$ notation, was measured on these samples by CF-IRMS (Gas Bench II and DeltaPlusXP, Thermo Finnigan) at Institut de Physique du Globe de Paris as in Guillon et al. (2012).

4.3. Water budget

The water table near the tunnel was monitored in the F1 and F2 wells with a 15 min time step using pressure transducers (Seabird SBE39, EMS), with a resolution of 2 mm. Atmosphere pressure fluctuations are not compensated. The flow rate of water dripping at the roof of the tunnel through a fracture in the middle of the chamber, 122 m from the tunnel entrance, was measured using a rain gauge (Précis Mécanique) and a data logger (CR1000, Campbell Scientific).

5. Results

5.1 Gas baseline concentrations in chamber C

Figure 3 presents SF₆, CO₂ and ²²²Rn baseline concentrations and activity measured in the isolated chamber C from 17/01/2012 to 02/03/2012, as well as the pressure difference between chamber C and the tunnel. During this period, the ²²²Rn activity in the tunnel is lower than 800 Bq m⁻³, which confirms baseline conditions. During the 45 days of the observation period, CO₂ concentration in chamber C linearly increases from 1000 to 2300 ppm (Figure 3a). This increase demonstrates that the unsaturated zone is a net source of CO₂, as previously shown by Pili et al. (2009). Radon activity shows a plateau, at an average value of 2.5 ± 1 kBq m⁻³ (Figure 3a). SF₆ concentration shows transient fluctuations with up to 1 ppm amplitude around a constant mean value of 2.5 ppm. These fluctuations are anti-correlated with the pressure difference between chamber C and the tunnel (Figure 3b).

Following Chiodini et al. (1998), the net CO₂ flux is quantified from the measured linear increase in CO₂ concentration in chamber C (Figure 3a). The obtained value for the CO₂ flux from the rock is 0.04 g_{CO2} m⁻² d⁻¹, which is comparable to the flux of 0.11 g_{CO2} m⁻² d⁻¹ measured in the Perm 4 borehole in the tunnel wall (Guillon et al., 2012). In Figure 4, the δ¹³C values for CO₂ of the discrete samples taken in chamber C are plotted versus the inverse of CO₂ concentrations measured simultaneously in the chamber, following Keeling (1961). In such a Keeling plot, the data points are aligned along a mixing line between two components. The intercept of this mixing line with the vertical axis determines the isotopic composition of the CO₂ source (Bowling et al., 2001). Here, CO₂ produced by the rock has a δ¹³C value of -22.8 ± 0.6 ‰ PDB.

5.2 Transient gas anomalies in the tunnel

Figure 5a presents SF₆, CO₂ and ²²²Rn concentrations and activity measured in the tunnel from 01/02/2012 to 25/04/2012. From 01/02/2012 to 02/03/2012, baseline conditions were observed: CO₂ concentration with an average of 600 ppm, ²²²Rn activity with an average of 400 Bq m⁻³, and SF₆ concentration below detection limit.

After 02/03/2012, the three gas concentrations increased well above the baseline, defining an anomaly. In only 5 days, ²²²Rn activity was multiplied by a factor of 30, and CO₂ concentration by a factor of 2. SF₆ concentration increased more slowly and reached its maximum after only 27 days. After their peak values, gas concentrations decreased back to their baseline values after one month and a half. Such a rapid, large and transient increase in gas concentration is typical of the anomalies previously observed in the Roselend tunnel (Trique et al., 1999, Richon et al., 2005, 2009). Anomalies and baseline are the two opposed regimes in the tunnel. Here we simultaneously measured an anomaly for all the three gases, including SF₆.

Because of the breathing of people working in the tunnel and of ventilation experiments carried out in the tunnel, gas concentrations in the tunnel were sometimes artificially altered for short periods of time. The corresponding data were removed from Figure 5 for the sake of clarity and these periods are mentioned on the time axis.

As shown in Figure 5b, the pressure measured in chamber C increased during the gas anomaly, and became higher than the pressure in the tunnel. Both the water table measured either in wells F1 or F2 and the flow rate of water dripping at the roof of chamber C increased during the gas anomaly (Figure 5c).

6. Discussion

6.1. Control of gas baseline by sources and sinks

The comparison between the theoretical (Figure 2) and measured (Figure 3) evolutions in chamber C reveals a good agreement for each of the three gases: CO₂ concentration steadily increases, ²²²Rn activity is stable and SF₆ concentration is nearly constant. The first order control on gas baseline concentrations in the unsaturated zone thus confirms to be the net budget of sources and sinks.

CO₂ concentration and ²²²Rn activity in the tunnel (Figure 5a) are higher than their atmospheric values (380 ppm for CO₂ and generally less than 50 Bq m⁻³ for ²²²Rn), which confirms additional contributions from the rock. These values result from the balance between the gas sources and the tunnel ventilation. Comparison of Figures 3 and 5a shows that the baselines of the three gases are up to two orders of magnitude higher in chamber C than in the tunnel. This is due to the absence of ventilation of the chamber.

The isotopic composition of CO₂ in chamber C (Figure 4) confirms that its source comes from the degassing of dissolved CO₂. At the temperature of the tunnel atmosphere (7°C), the equilibrium fractionation factor between dissolved inorganic carbon (dominated by

HCO₃⁻ in the nearly neutral dripping water) and gaseous CO₂ is 9.6 ± 0.4 ‰ PDB (Friedman and O'Neil, 1977). The carbon isotope composition of dissolved inorganic carbon in water dripping at the roof of the tunnel is -10.9 ± 1.5 ‰ PDB (Pili et al., 2009). Therefore the isotopic composition of CO₂ degassing from water dripping in the tunnel is expected to be -20.5 ± 1.6 ‰ PDB at equilibrium, which is close to the value of -22.8 ± 0.6 ‰ obtained in chamber C (Figure 4).

6.2. Modulation of gas baseline concentrations by barometric pressure fluctuations

The SF₆ baseline concentration in chamber C decreases (resp. increases) when the pressure in the chamber is higher (resp. lower) than the pressure in the atmosphere (Figure 3b). Atmospheric pressure fluctuations propagate in the host rock, and the pressure measured in chamber C is attenuated and delayed compared to the atmosphere (Figure 5b). These attenuation and delay are well reproduced by numerical simulation of the diffusion of atmospheric pressure fluctuations in porous media as developed in Guillon et al. (2013), with a permeability of 1.0×10^{-13} m² and a porosity of 5 %. The pressure difference between chamber C and the host rock creates an advective flux of air and therefore of SF₆. As chamber C was open and ventilated following SF₆ injection, SF₆ concentration became higher in the rock porosity than in the chamber. When the chamber is under-pressurized compared to the host rock, air at high SF₆ concentration is pumped from the rock porosity into the chamber, leading to an increased concentration in the chamber. When the chamber is over-pressurized, air and SF₆ are pumped out of it.

As for SF₆, CO₂ and ²²²Rn concentrations are expected to be similarly modulated by pressure driven advection. However, these fluctuations are masked by the strong sources of the two gases and their high baseline values. The first derivative of the concentration is used to remove this effect. As reported in Figure 3b, the first derivative of ²²²Rn activity in chamber C is at first order anti-correlated with the pressure difference between the chamber and the tunnel, showing that baseline ²²²Rn activity is also modulated by atmospheric pressure. This has also been shown by Richon et al. (2005, 2009) on other data sets. The pressure modulation observed in chamber C is not observed on gas concentration measured in the tunnel (Figure 5a), where the baselines are too low, due to the natural ventilation.

6.3. Triggering of gas anomalies by water movements

The combined monitoring of SF₆, CO₂ and ²²²Rn in the Roselend Natural Laboratory allows to identify the mechanism triggering gas anomalies in the tunnel. Anomalies, defined by large and transient concentration increases, occur simultaneously for all three measured gases, whatever their sources. An increase in the gas source, as could be proposed for ²²²Rn production (Torgersen et al., 1990; Vinson et al., 2009), can thus be ruled out. The increase in concentrations must therefore come from an increased advective transport of all the gases. According to Darcy's law, advective transport is controlled by two parameters: the gas permeability and the pressure gradient.

Contrary to the baseline regime, the overpressure measured in chamber C during a gas anomaly cannot be explained by the diffusion of atmospheric pressure fluctuations, whatever the value of the permeability (Figure 5b, starting from 02/03/2012). The role of the increase in permeability to explain the anomalies can thus be ruled out. An increase in pore pressure is needed for pressure in chamber C to become and stay higher than in the atmosphere, independently of atmospheric pressure fluctuations. Such a pressure anomaly was also observed in borehole Perm 3 (data not shown) and in borehole Perm 1

(Wassermann et al., 2011). In the tunnel, any increase in pressure would be immediately dampened in the atmosphere, and no pressure anomaly is visible.

Pore fluid overpressure could be caused by mechanical deformation, as first proposed by Trique et al. (1999) for the generation of ^{222}Rn anomalies in the tunnel. These anomalies were indeed observed to occur simultaneously with rapid increases in the Roselend lake level associated with changes in ground tilt (Trique et al., 1999). However, changes of the lake level are intrinsically associated with changes of the water table. Movements of the water table are also known to be responsible for ground tilt (Fabian and Kumpel, 2003). Pore fluid overpressure could then be caused by water movements. Recently a new hydro-pneumatic model called piston effect has been proposed as a generation mechanism to explain ^{222}Rn anomalies in the Roselend tunnel (Richon, 2011, Richon and Sabroux, in prep): rapid increases of the water table push ^{222}Rn -rich air through fractures located below the tunnel. Our work confirms such a hydro-pneumatic mechanism.

The anomaly presented in Figure 5a occurred in Spring during the large snowmelt period. At this time of the year, the lake level increases due to snowmelt water collected as runoff; the water table rises as shown by head measurements in the two F1 and F2 wells and infiltration increases as shown by drip water flow rate in chamber C (Figure 5c). At this stage, the respective contributions of infiltration and rise in lake level to the rise of the water table are not established. These water movements, rise of the water table and increase in water infiltration, can both displace air in the matrix porosity and the fractures, thus generating an anomaly by increasing pressure and gas concentrations in chamber C. In the tunnel, only increases in gas concentrations can be recorded.

During the anomaly, an overpressure of 10 mbar occurred in the chamber (Figure 5b). This must result from the addition of at least 0.7 m^3 of air in the isolated chamber, if loss due to its permeability is neglected. From the surface area of the chamber wall (110 m^2) and a rock porosity of 5 %, this amount of air would have come from a rock layer around the chamber having a thickness between 0.15 and 3.65 m. This air advection would have been driven by the same rise in water table or the infiltration of 7 mm of water. For the same proportion of air added in the tunnel, the measured increase in ^{222}Rn activity during the first 5 days of the anomaly indicates that the activity in the fractures is on the order of 1 MBq.m^{-3} . Regarding CO_2 , a concentration of 2 % is obtained for the fractures. Such values are consistent with radon activities and CO_2 concentrations measured in the boreholes Perm and SC. Similarly, the amplitude of the SF_6 peak indicates a concentration in the fractures of less than 100 ppm, which indicates dilution following SF_6 injection at 1000 ppm in the chamber.

7. Conclusion

Gas concentrations in the unsaturated zone are highly dynamic. Baselines are controlled by a balance of their sources and sinks, and modulation by advection driven by atmospheric pressure fluctuations. In addition to a highly dynamic baseline, gas concentrations may also show anomalies driven by increases in the pore pressure due to water movements. This confirms a recently hydro-pneumatic mechanism identified as the cause of ^{222}Rn anomalies in the Roselend tunnel (Richon, 2011, Richon and Sabroux, in prep). Here we extend this mechanism to the entire unsaturated zone and to any other gas present in the pore space. It may result either from increases in infiltration or from rises of the water table.

Modest overpressures, of the order of 1 to 10 mbar, may result in large changes in gas concentrations, up to 2 orders of magnitude, in response to water movements or

atmospheric pressure fluctuations. Multi-parameter monitoring of several gases as well as pressure and water fluxes is thus a key feature wherever detection has to be made.

The occurrence of two regimes, baseline and anomalies, is a general feature observed not only in the Roselend Natural Laboratory, but also in all unsaturated zones, from depth to surface (Batiot-Guilhe et al., 2007; Kowalczyk and Froelich, 2010; Troester and White, 1984). The controls shown here on gas baseline concentrations and anomalies must be identified before implementing any gas detection protocol in the field.

Acknowledgments

We are grateful to P. Richon and J-C.Sabroux for fruitful discussions. J.. Wassermann is thanked for initiating pressure monitoring at the Roselend Natural Laboratory. We thank Y. Duteille, C. Legall and S. Belhadj from Autochim for their availability and help in using the Innova photoacoustic analyzers. The technical help of P. Carrera, especially in winter time, is greatly acknowledged. Thanks go to the city of Beaufort for giving us access to the Roselend Natural Laboratory. This is IPGP contribution number 3399.

References

- Balcke, G.U., Meenken, S., Hoefer, C. and Oswald, S.E., 2007. Kinetic Gas Water Transfer and Gas Accumulation in Porous Media during Pulsed Oxygen Sparging. *Environmental Science & Technology*, 41(12): 4428-4434.
- Baldini, J.U.L., Baldini, L.M., McDermott, F. and Clipson, N., 2006. Carbon dioxide sources, sinks, and spatial variability in shallow temperate zone caves: Evidence from Ballynamintra Cave, Ireland. *Journal of Cave and Karst Studies*, 68(1): 4-11.
- Batiot-Guilhe, C., Seidel, J.L., Jourde, H., Hebrard, O. and Bailly-Comte, V., 2007. Seasonal variations of CO₂ and Rn-222 in a mediterranean sinkhole - spring (Causse d'Aumelas, SE France). *International Journal of Speleology*, 36(1): 51-56.
- Beaubien, S.E., Jones, D. G., Gal, F., Barkwith, A. K. A. P., Braibant, G., Baubron, J. C., Ciotoli, G., Graziani, S., Lister, T. R., Lombardi, S., Michel, K., Quattrocchi, F. and Strutt, M. H., 2013. Monitoring of near-surface gas geochemistry at the Weyburn, Canada, CO₂-EOR site, 2001-2011. *International Journal of Greenhouse Gas Control*, 16, Supplement 1: S236-S262.
- Boreham, C., Underschultz, J., Stalker, L., Kirste, D., Freifeld, B., Jenkins, C. and Ennis-King, J., 2011. Monitoring of CO₂ storage in a depleted natural gas reservoir: Gas geochemistry from the CO₂CRC Otway Project, Australia. *International Journal of Greenhouse Gas Control*, 5(4): 1039-1054.
- Bowling, D.R., Tans, P.P. and Monson, R.K., 2001. Partitioning net ecosystem carbon exchange with isotopic fluxes of CO₂. *Global Change Biology*, 7(2): 127-145.
- Breecker, D. and Sharp, Z.D., 2008. A field and laboratory method for monitoring the concentration and isotopic composition of soil CO₂. *Rapid Communications in Mass Spectrometry*, 22(4): 449-454.
- Chiodini, G., Cioni, R., Guidi, M., Raco, B. and Marini, L., 1998. Soil CO₂ flux measurements in volcanic and geothermal areas. *Applied Geochemistry*, 13(5): 543-552.
- Cohen, G., Loisy, C., Laveuf, C., Le Roux, O., Delaplace, P., Magnier, C., Rouchon, V., Garcia, B. and Cerepi, A., 2013. The CO₂-Vadose project: Experimental study and modelling of CO₂ induced leakage and tracers associated in the carbonate vadose zone. *International Journal of Greenhouse Gas Control*, 14: 128-140.
- Evans, D.D., 2001. Flow and transport through unsaturated fractured rock: an overview. In: D.D. Evans, T.J. Nicholson and T.C. Rasmussen (Editors), *Flow and Transport through Unsaturated Fractured Rock*. AGU, pp. 1-18.
- Fabian, M. and Kumpel, H.J., 2003. Poroelasticity: observations of anomalous near surface tilt induced by ground water pumping. *Journal of Hydrology*, 281(3): 187-205.
- Fernandez Prini, R., Alvarez, J.L. and Harvey, A.H., 2003. Henry's Constants and Vapor-Liquid Distribution Constants for Gaseous Solutes in H₂O and D₂O at High Temperatures. *J. Phys. Chem. Ref. Data*, 32(2): 903-916.
- Friedman, I. and O'Neil, J.R., 1977. Compilation of stable isotope fractionation factors of geochemical interest. In: M. Fleischer (Editor), *Data of Geochemistry*, sixth edition. United States Government Printing Office, Washington.
- Girault, F. and Perrier, F., 2012. Measuring effective radium concentration with large numbers of samples. Part II - general properties and representativity. *Journal of Environmental Radioactivity*, 113: 189-202.
- Groffman, P.M., Hardy, J. P., Fashu-Kanu, S., Driscoll, C. T., Cleavitt, N. L., Fahey, T. J. and Fisk, M. C., 2013. Snow depth, soil freezing and nitrogen cycling in a northern hardwood forest landscape. *Biogeochemistry*, 102(1-3): 223-238.

- Guillon, S., Pili, E. and Agrinier, P., 2012. Using a laser-based CO₂ carbon isotope analyser to investigate gas transfer in geological media. *Applied Physics B: Lasers and Optics*, 107: 449-457.
- Guillon, S., Vu, T.M., Pili, E. and Adler, P.M., 2013. Field and numerical determinations of air permeability of unsaturated fractured porous rocks on various scales. *Water Resources Research*, 49: 1-11.
- Harnisch, J. and Eisenhauer, A., 1998. Natural CF₄ and SF₆ on Earth. *Geophysical Research Letters*, 25(13): 2401-2404.
- Jodar, J., Medina, A. and Carrera, J., 2011. Gas tracer transport in a heterogeneous fracture in two-phase flow conditions. Experimental and modeling results. *Advances in Water Resources*, 34(11): 1401-1412.
- Keeling, C.D., 1961. The concentration and isotopic abundances of carbon dioxide in rural and marine air. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 24(3-4): 277-298.
- Kowalczyk, A.J. and Froelich, P.N., 2010. Cave air ventilation and CO₂ outgassing by radon-222 modeling: how fast do caves breathe? *Earth and Planetary Science Letters*, 289: 209-219.
- Lewicki, J., Hilley, G., Dobeck, L. and Spangler, L., 2010. Dynamics of CO₂ fluxes and concentrations during a shallow subsurface CO₂ release. *Environmental Earth Sciences*, 60(2): 285-297.
- Masset, O. and Loew, S., 2010. Hydraulic conductivity distribution in crystalline rocks, derived from inflows to tunnels and galleries in the Central Alps, Switzerland. *Hydrogeology Journal*, 18(4): 863-891.
- Nazaroff, W.W., 1992. Radon transport from soil to air. *Reviews of Geophysics*, 30(2): 137-160.
- Patriarche, D., Pili, E., Adler, P.M. and Thovert, J.-F., 2007. Stereological analysis of fractures in the Roselend tunnel and permeability determination. *Water Resources Research*, 43: 09421-09421.
- Perrier, F. and Richon, P., 2010. Spatiotemporal variation of radon and carbon dioxide concentrations in an underground quarry: coupled processes of natural ventilation, barometric pumping and internal mixing. *Journal of Environmental Radioactivity*, 101(4): 279-296.
- Perrier, F., Richon, P. and Sabroux, J.C., 2005. Modelling the effect of air exchange on Rn-222 and its progeny concentration in a tunnel atmosphere. *Science of the Total Environment*, 350(1-3): 136-150.
- Perrier, F., Richon, P. and Sabroux, J.C., 2009. Temporal variations of radon concentration in the saturated soil of Alpine grassland: The role of groundwater flow. *Science of the Total Environment*, 407(7): 2361-2371.
- Pili, E., Bureau, S., Perrier, F., Patriarche, D., Charlet, L., Adler, P. M. and Richon, P., 2008. Reactive transport and residence times in unsaturated fractured rocks from field-scale experiments. In: M. Barnett, O. and D.B. Kent (Editors), *Developments in Earth and Environmental Sciences*. Elsevier Science B.V., pp. 441-468.
- Pili, E., Dellinger, M., Charlet, L., Agrinier, P., Chabaux, F. and Richon, P., 2009. Transient geochemical and hydrogeological coupling during weathering and the carbon cycle in the critical zone. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 73(13): A1029.
- Pili, E., Perrier, F. and Richon, P., 2004. Dual porosity mechanism for transient groundwater and gas anomalies induced by external forcing. *Earth and Planetary Science Letters*, 227(3-4): 473-480.
- Provost, A.-S., Richon, P., Pili, E., Perrier, F. and Bureau, S., 2004. Fractured Porous Media Under Influence: The Roselend Experiment. *EOS, Transactions, American Geophysical Union*, 85(12): 113-124.
- Richon, P., Perrier, F., Pili, E. and Sabroux, J.C., 2009. Detectability and significance of 12 hr barometric tide in radon-222 signal, dripwater flow rate, air temperature and

- carbon dioxide concentration in an underground tunnel. *Geophysical Journal International*, 176(3): 683-694.
- Richon, P., Perrier, F., Sabroux, J. C., Trique, M., Ferry, C., Voisin, V. and Pili, E., 2005. Spatial and time variations of radon-222 concentration in the atmospheres of a dead-end horizontal tunnel. *Journal of Environmental Radioactivity*, 78(2): 179-198.
- Richon, P., 2011. Le radon-222 traceur de la dynamique des systèmes géologiques. Méthodologie et traitement du signal, interprétation du comportement du radon-222 en milieux géologiques actifs. PhD Thesis, Institut de Physique du Globe de Paris, Paris, 418 pp, <http://www.sudoc.abes.fr/DB=2.1/SRCH?IKT=12&TRM=166838276>.
- Richon, P. and Sabroux, J.-C., Clear evidence of a hydropneumatic "piston" effect in the generation of radon anomalies, *in preparation*.
- Spence, J. and Telmer, K., 2005. The role of sulfur in chemical weathering and atmospheric CO₂ fluxes: Evidence from major ions, delta C-13(DIC), and delta S-34(SO₄) in rivers of the Canadian Cordillera. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 69(23): 5441-5458.
- Stober, I. and Bucher, K. (Editors), 2000. Hydrogeology of crystalline rocks. Water Science and Technology Library. Kluwer Academic Publishers, 275 pp.
- Sullivan, T.M. and Pescatore, C., 1994. Release of radon contaminants from Yucca Mountain; the role of buoyancy driven flow, Brookhaven National Laboratory, Environmental and Waste Technology Center.
- Tanner, A.B., 1993. Methods of characterization of ground for assessment of indoor radon potential at a site. In: L.C.S. Gundersen and R.B. Wanty (Editors), *Field studies of Radon in rocks, soils, and water*. USGS, pp. 1-18.
- Torgersen, T., Benoit, J. and Mackie, D., 1990. Controls on groundwater Rn-222 concentrations in fractured rock. *Geophysical Research Letters*, 17(6): 845-848.
- Toutain, J.P. and Baubron, J.-C., 1999. Gas geochemistry and seismotectonics: a review. *Tectonophysics*, 304: 1-27.
- Trique, M., Richon, P., Perrier, F., Avouac, J.P. and Sabroux, J.C., 1999. Radon emanation and electric potential variations associated with transient deformation near reservoir lakes. *Nature*, 399(6732): 137-141.
- Troester, J.W. and White, W.B., 1984. Seasonal fluctuations in the carbon-dioxide partial pressure in a cave atmosphere. *Water Resources Research*, 20(1): 153-156.
- Ullah, S. and Moore, T.R., 2011. Biogeochemical controls on methane, nitrous oxide, and carbon dioxide fluxes from deciduous forest soils in eastern Canada. *Journal of Geophysical Research-Biogeosciences*, 116.
- Vinson, D.S., Vengosh, A., Hirschfeld, D. and Dwyer, G.S., 2009. Relationships between radium and radon occurrence and hydrochemistry in fresh groundwater from fractured crystalline rocks, North Carolina (USA). *Chemical Geology*, 260(3-4): 159-171.
- Wassermann, J., Sabroux, J. C., Pontreau, S., Bondiguel, S., Guillon, S., Richon, P. and Pili, E., 2011. Characterization and monitoring of the excavation damaged zone in fractured gneisses of the Roselend tunnel, French Alps. *Tectonophysics*, 503(1-2): 155-164.
- Weisbrod, N., Dragila, M.I., Nachshon, U. and Pillersdorf, M., 2009. Falling through the cracks: The role of fractures in Earth-atmosphere gas exchange. *Geophysical Research Letters*, 36: L02401.

Figures

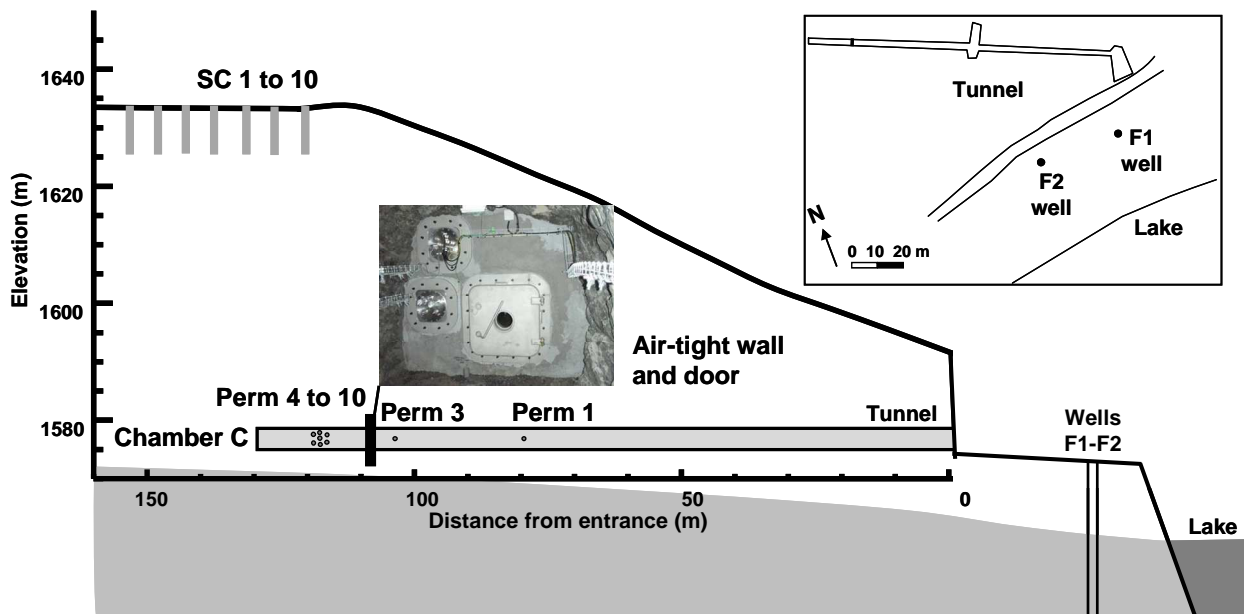


Figure 1: Cross-section of the Roselend Natural Laboratory with locations of the chamber C and the boreholes SC1 to 10 and Perm 1 to 10, and a picture of the air-tight bulkhead, door and connection plates viewed from the chamber. Location of wells F1-F2 is only approximate. Inset: plane view of the tunnel with locations of the F1 and F2 wells.

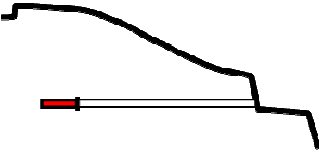
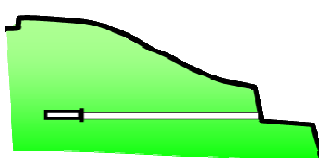
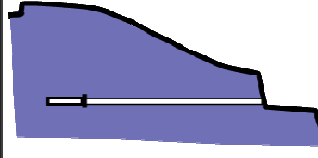
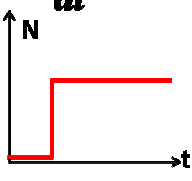
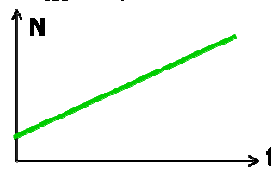
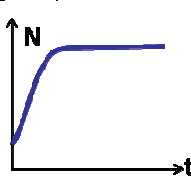
	SF₆	CO₂	²²²Rn
Distribution	 Point source	 Heterogeneous	 Homogeneous
Sources	Artificial injection	Soil respiration Calcite dissolution	Ra decay
Sinks	None	None	Radioactive decay (T=3.8 days)
Expected baseline concentration in chamber C	$\frac{dC}{dt} = 0$  $C(t) = C_0$	$\frac{dC}{dt} = \frac{S}{V} \Phi_{CO2}$  $C(t) = C_0 + \frac{S}{V} \Phi_{CO2} \cdot t$	$\frac{dA}{dt} = \frac{S}{V} \Phi_{Rn} - \lambda \cdot A$  $A(t) = A_0^* \cdot e^{-\lambda t} + \frac{S \Phi_{Rn}}{V \lambda}$

Figure 2: Theoretical baseline distribution of SF₆ (red), CO₂ (green) and ²²²Rn (blue) in the unsaturated zone. For each gas, the mass balance equation corresponds to the listed sources and sinks. C (resp. A) is the gas concentration (resp. volumetric activity), Φ the source flux density, λ the radioactive decay constant and S (resp. V) the wall surface (resp. the volume) of chamber C. The corresponding theoretical evolution in chamber C is represented for each gas by the solution of the mass balance equation and the corresponding graph.

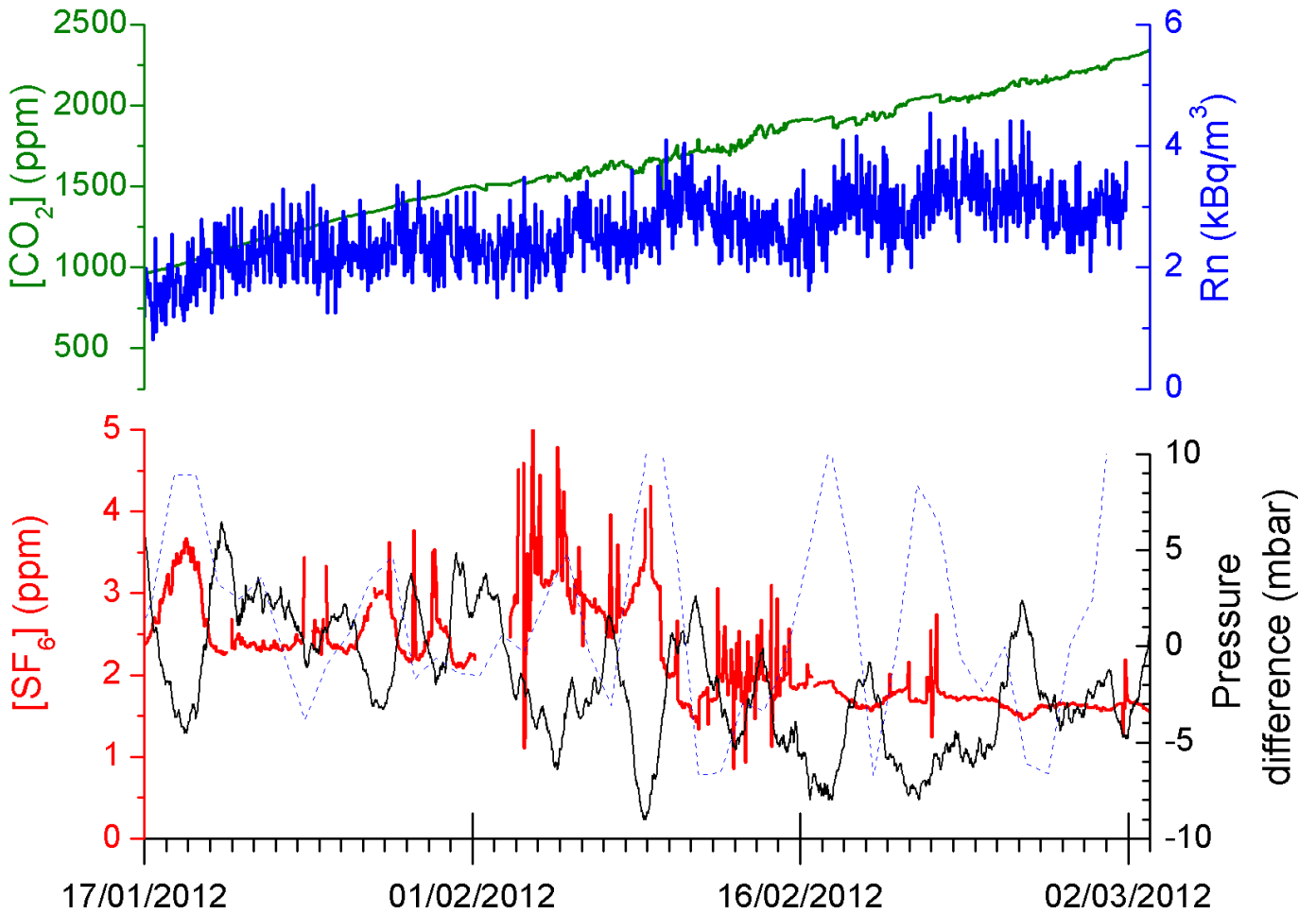


Figure 3: Baseline gas concentrations measured in chamber C. a) CO_2 concentration (green) and ^{222}Rn activity (blue). b) SF_6 concentration (red) and first derivative of ^{222}Rn activity (dotted blue), anti-correlated with the pressure difference between chamber C and the tunnel (black). The noise of the ^{222}Rn activity data was smoothed by averaging data over periods of 24 hours before calculating the first derivative.

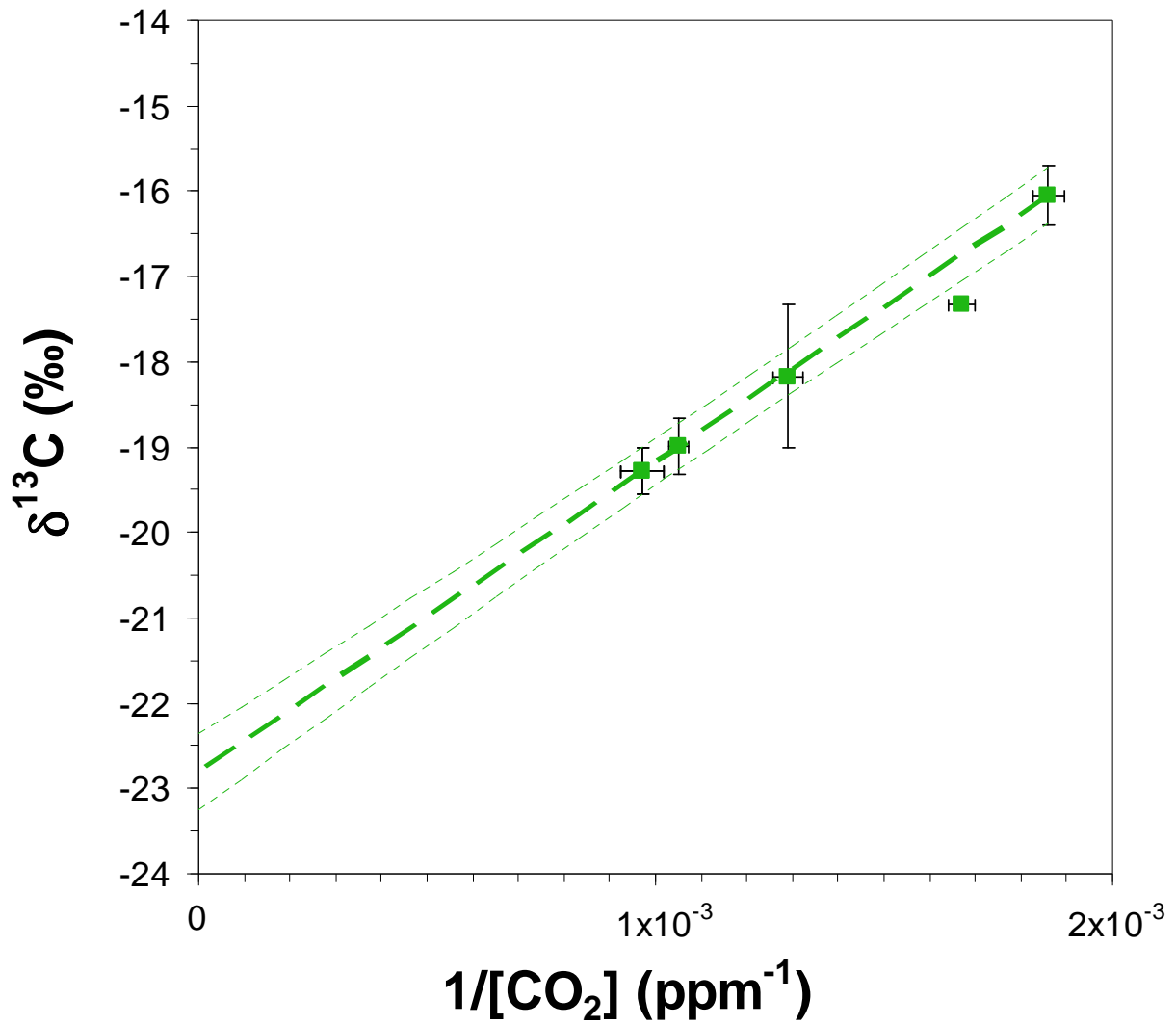


Figure 4: Keeling plot in chamber C: CO₂ carbon isotope composition is plotted versus the inverse of CO₂ concentration in samples from chamber C. The intercept of the regression line (dashed, regression coefficient 0.96) indicates the carbon isotope composition of the source end member in a binary mixing model (see text for details). The two dotted hyperbola limit the 95% confidence interval of the linear regression.

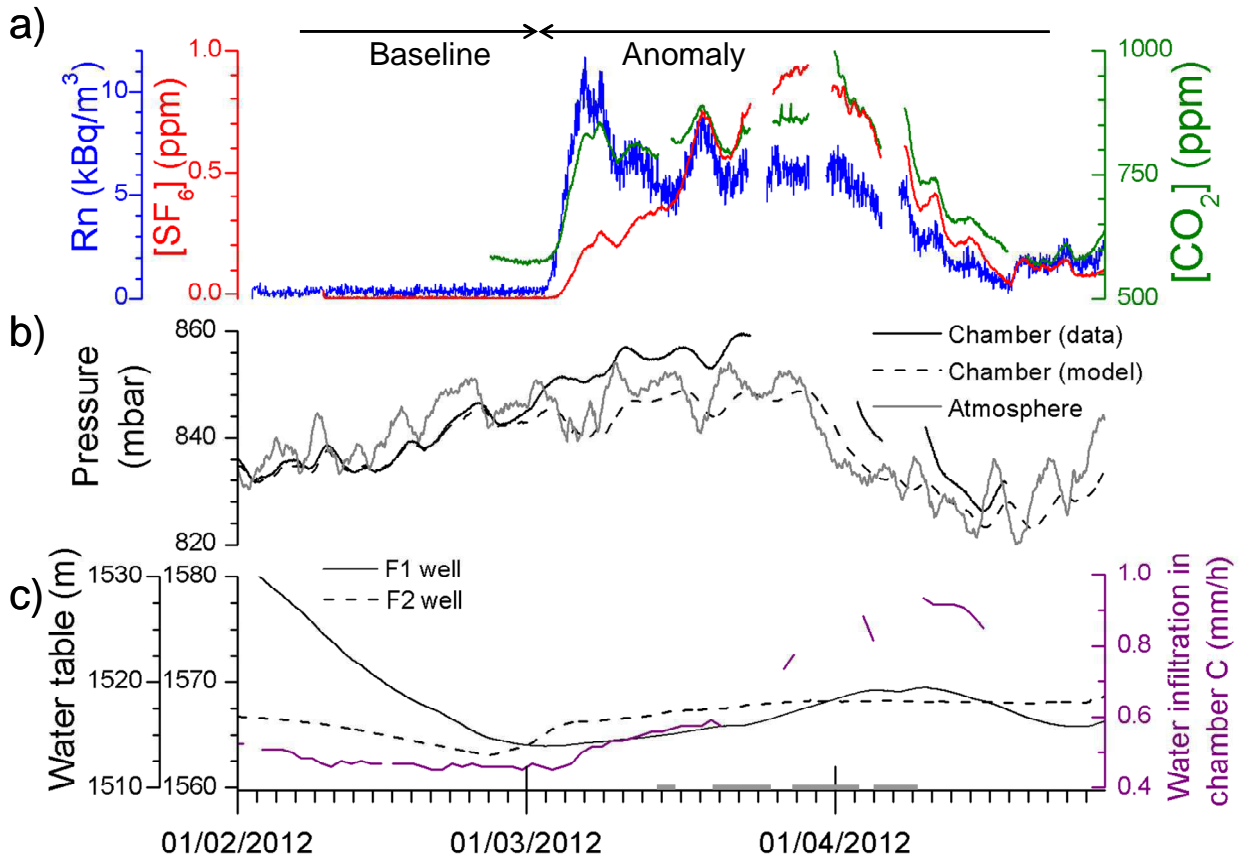


Figure 5: a) SF_6 (red) and CO_2 (green) concentrations and ^{222}Rn activity (blue) measured in the tunnel. The transient gas anomaly occurs from 02/03/2012 to 18/04/2012. b) Pressure measured in chamber C (solid black line) and in the tunnel (solid grey line). The dashed line is the modeled pressure in chamber C using the equation of pressure diffusion in an equivalent porous medium (see text). c) Water table measured in two wells nearby the tunnel and flow rate of water dripping at the roof of chamber C (purple). Grey bars on the time axis indicate periods when data were artificially altered and therefore removed from the graph (see text).

3.3.2 Modulation de la ligne de base par l'advection

Suite à l'injection de quantités importantes de SF_6 dans la chambre C en juillet 2011 puis en octobre 2012, les concentrations en SF_6 dans la roche autour du tunnel sont élevées. D'après la modélisation numérique d'une injection d'air dans la chambre (Guillon *et al.*, 2013, Figure 3c), l'air et le traceur injectés envahissent en effet toute la roche autour du tunnel.

Dans l'article Guillon *et al.* (soumis) présenté précédemment, les observations réalisées dans la chambre C montrent une modulation de la ligne de base des gaz par l'advection, sous l'effet des fluctuations de pression dans l'atmosphère. Un modèle d'advection est ici utilisé pour interpréter les fluctuations des concentrations en CO_2 et en SF_6 dans le tunnel.

3.3.2.1 Observations

La Figure 3.4 montre les évolutions des concentrations en SF_6 et en CO_2 mesurées dans le tunnel. La concentration en SF_6 présente des pics de 10 à 30 ppm d'amplitude, qui semblent corrélés à des baisses de la pression dans le tunnel. La concentration en CO_2 est dominée par des augmentations de plusieurs centaines de ppm lors des visites (respiration humaine), qui s'atténuent ensuite en quelques jours grâce à la ventilation naturelle du tunnel. En dehors de ces périodes, la concentration en CO_2 présente également des plus petits pics d'environ 20 ppm d'amplitude, qui semblent eux aussi corrélés à des baisses de pression.

Pour aller plus loin, j'ai cherché à confirmer et quantifier la relation entre l'amplitude des pics de SF_6 et l'amplitude de la baisse de la pression atmosphérique ΔP qui précède le pic (mesurée entre le minimum de pression au moment du pic de SF_6 et le maximum de pression qui précède). La Figure 3.5a confirme l'existence d'une corrélation linéaire entre l'amplitude des pics de SF_6 et l'amplitude de la baisse de la pression atmosphérique ΔP , avec un coefficient de corrélation de 0,64. Plus la baisse de pression est importante, plus l'amplitude du pic de SF_6 est grande. Cette corrélation nous indique que le mécanisme à l'origine de ces anomalies en SF_6 , et également en CO_2 , est de type advectif : les fluctuations de pression dans le tunnel créent des gradients de pression dans la roche, et donc des mouvements d'air, de SF_6 et de CO_2 , depuis la roche vers le tunnel.

Sur la Figure 3.5b, on observe une légère décroissance au cours du temps de l'intensité des pics de SF_6 , normalisée par rapport à l'intensité de la baisse de pression : pour une même baisse de pression, le pic de SF_6 devient progressivement de moins en moins grand. Cette évolution temporelle révèle un épuisement, très lent, du réservoir de SF_6 dans la roche. Ce résultat n'est pas surprenant, étant donné que la quantité de SF_6 présente dans la roche est limitée.

En période d'anomalie, l'amplitude des pics de SF_6 augmente fortement (Figures 3.4 et 3.5b), sans être corrélée à une baisse de pression importante. Ce changement de régime définit l'existence d'une anomalie, qui fait intervenir d'autres processus, et pour laquelle il a déjà été montré que les fluctuations de pression n'exercent qu'un effet additionnel de modulation (Richon *et al.*, 2005).

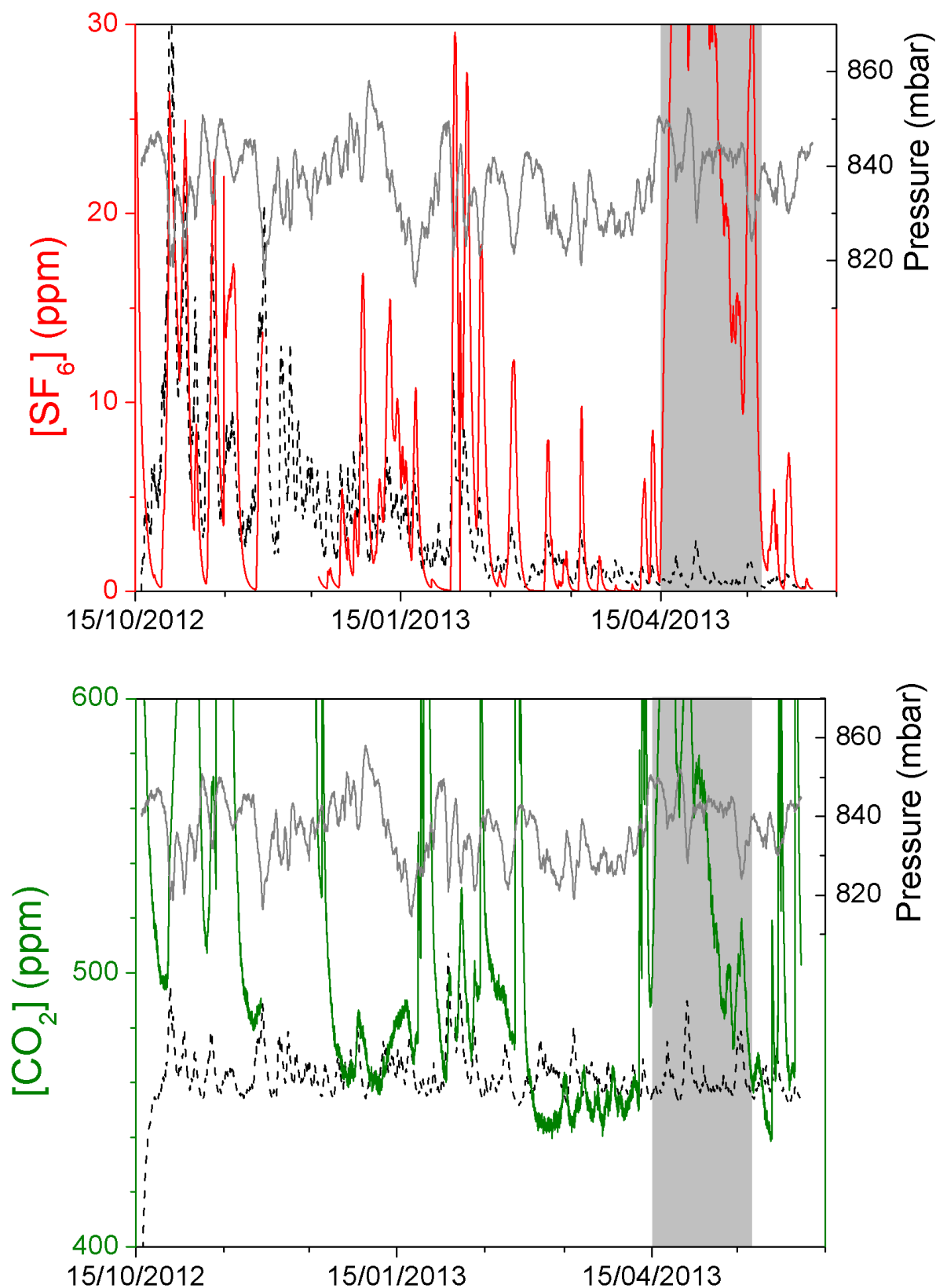


FIGURE 3.4 – Concentrations en SF_6 (rouge) et en CO_2 (vert) mesurées dans le tunnel, et calculées avec un modèle 1D d'advection (pointillés noirs). La pression dans le tunnel est indiquée en gris. La période grisée correspond à une anomalie.

FIGURE 3.4 – SF_6 (red) and CO_2 (green) concentrations measured in the tunnel, and calculated with a 1D model (dashed lines). Pressure in the tunnel is shown by the grey curves. The grey zone corresponds to an anomaly.

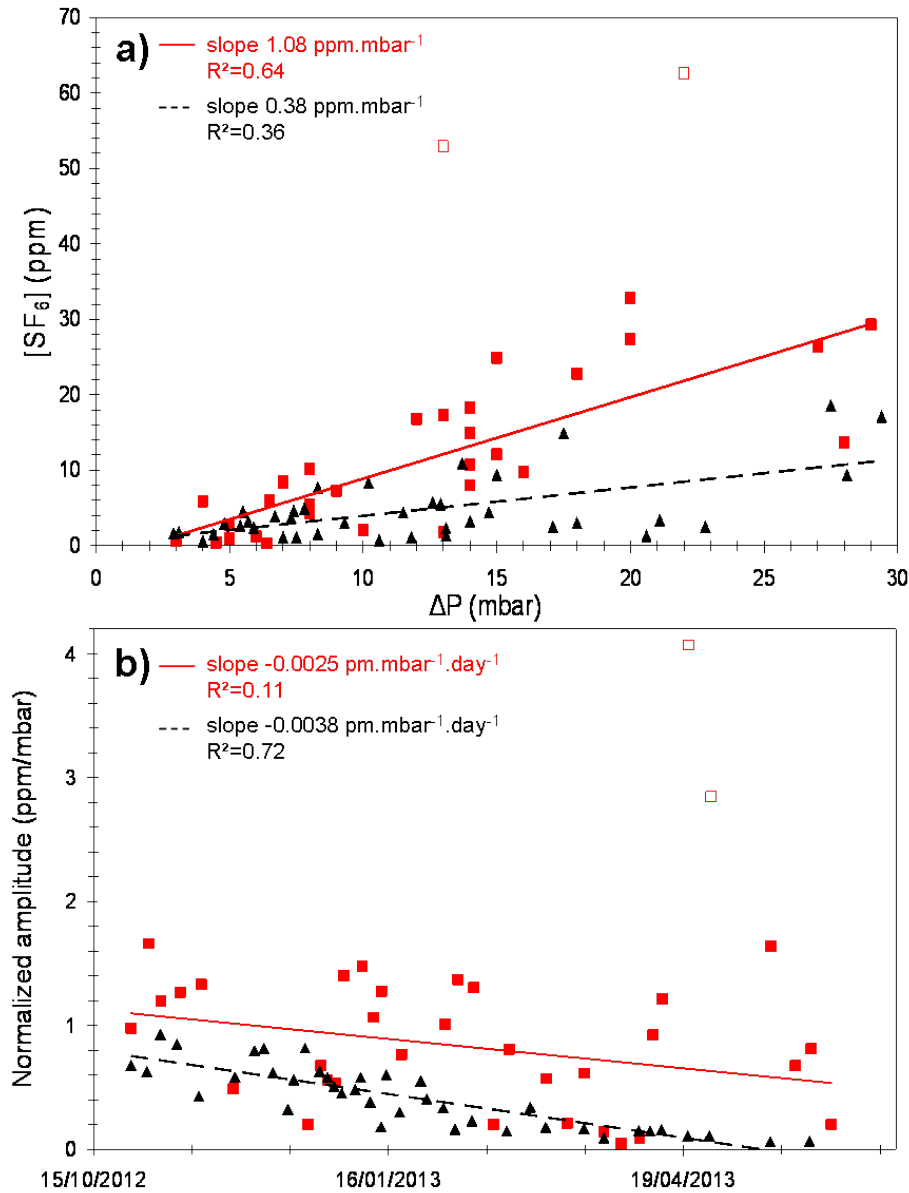


FIGURE 3.5 – Relations entre l’amplitude des pics de SF_6 dans le tunnel et l’amplitude ΔP des dépressions associées. Les symboles rouges représentent les mesures, les noirs le modèle, les symboles rouges vides indiquent les deux pics mesurés en avril 2013, en période d’anomalie. a) Corrélation entre l’amplitude des pics de SF_6 dans le tunnel et l’amplitude des dépressions simultanées. b) Évolution temporelle de l’amplitude des pics de SF_6 normalisée à l’amplitude de la baisse de pression ΔP .

FIGURE 3.5 – a) Correlation between amplitudes of SF_6 peaks in the tunnel and amplitudes of the simultaneous depressions ΔP . b) Temporal evolution of the amplitude of SF_6 peaks normalized to the amplitude of the depression. Red symbols correspond to the data, black ones to the model, and empty red symbols correspond to peaks measured during an anomaly. Values of the regression slopes and coefficients are indicated on each graph.

3.3.2.2 Interprétation avec un modèle 1D

Un modèle d'advection 1D entre la roche et le tunnel est utilisé pour interpréter et reproduire les variations des concentrations en CO_2 et en SF_6 présentées ci-dessus. La Figure 3.6 décrit le modèle utilisé. On considère l'évolution de deux réservoirs de gaz, l'un dans la roche (ϕV_{rock}), l'autre dans le tunnel (V , sans la chambre). Comme on l'a vu dans le Chapitre 2, les fluctuations de la pression dans le tunnel $P_{tun}(t)$ diffusent dans la roche. Il existe donc un gradient de pression entre la roche et le tunnel, qui crée un flux advectif Φ_{adv} et transporte les gaz contenus dans l'air de la porosité de la roche vers le tunnel et réciproquement. On fait ici l'approximation que le flux d'air s'établit à travers une lame de roche d'épaisseur équivalente L , entre la roche et le tunnel. La ventilation naturelle du tunnel par l'atmosphère extérieure est prise en compte. Elle entraîne une diminution des concentrations. Enfin, le flux de CO_2 produit par les parois du tunnel doit être pris en compte. On utilise ici la valeur du flux mesurée dans la chambre (Tableau 3.2). Il n'y a pas de production de SF_6 par la roche.

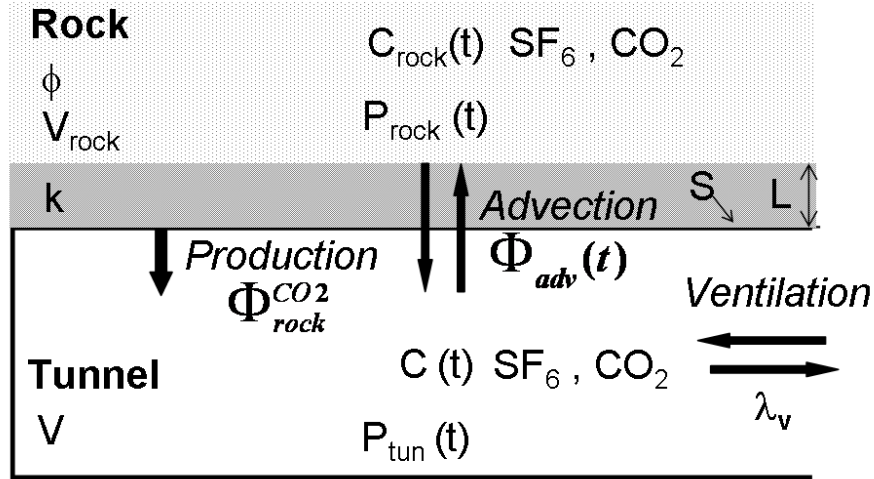


FIGURE 3.6 – Représentation schématique du modèle 1D utilisé pour calculer l'évolution de la concentration en SF_6 et en CO_2 dans le tunnel. Les processus pris en compte sont indiqués, ainsi que les paramètres, dont la signification et les valeurs sont indiquées dans le Tableau 3.3.

FIGURE 3.6 – Drawing of the 1D model used to calculate SF_6 and CO_2 concentrations in the tunnel. Processes, parameters and variables are indicated. Parameters values are in Table 3.3.

Dans un premier temps, l'évolution temporelle de la pression P_{rock} à une profondeur L est obtenue selon le modèle 1D utilisé au Chapitre 2, à partir de l'évolution temporelle de la pression mesurée dans le tunnel.

Dans un deuxième temps, on détermine les évolutions des concentrations en gaz dans le tunnel et dans le volume de roche. Le bilan de matière réalisé dans le tunnel, qui prend en compte les différents processus listés ci-dessus, permet d'obtenir l'équation :

$$\frac{dC}{dt} = \frac{1}{V} \Phi(t)_{adv} - \lambda_v C(t) + \frac{S}{V} \Phi_{rock}^{CO_2} \quad (3.4)$$

TABLEAU 3.3 – Symboles, unités et valeurs des paramètres et variables utilisés pour le modèle 1D d’advection de gaz entre la roche et le tunnel.

TABLE 3.3 – Symbols, units and values of the parameters and variables used in the 1D model of gas advection between the rock and the tunnel.

Parameter, variable	Symbol	Unit	Value
Permeability	k	m ²	3·10 ⁻¹⁴
Porosity	ϕ	-	0.01
Tunnel surface	S	m ²	1124
Tunnel volume	V	m ³	436
Volume of rock reservoir	V_{rock}	m ³	2700
Equivalent depth of migration	L	m	5
Ventilation rate in the tunnel	λ	s ⁻¹	8·10 ⁻⁶
Dynamic viscosity of air	μ	Pa.s	1.8·10 ⁻⁵
Initial concentrations in rock porosity	$C_{rock}^{SF_6}$	%	1
	$C_{rock}^{CO_2}$	%	1
CO ₂ flux produced by the rock	$\Phi_{rock}^{CO_2}$	m ³ .m ⁻² .s ⁻¹	6.5·10 ⁻¹⁰
Advective flux between the rock and the tunnel	$\Phi_{adv}(t)$	m ³ .s ⁻¹	-

où C est la concentration du gaz, SF₆ ou CO₂, dans le tunnel, V le volume du tunnel, $\Phi(t)_{adv}$ le flux advectif de gaz créé par la différence de pression entre la roche et le tunnel, λ_V la constante de ventilation du tunnel et $\Phi_{rock}^{CO_2}$ le flux de CO₂ produit par les parois du tunnel (ce dernier terme est nul pour le SF₆). Les valeurs de ces paramètres sont indiquées dans le Tableau 3.3.

Un bilan de matière dans le volume de roche aboutit à l’équation :

$$\frac{dC_{rock}}{dt} = -\frac{1}{\phi V_{rock}} \Phi(t)_{adv} \quad (3.5)$$

où C_{rock} est la concentration du gaz dans la porosité de la roche, V_{rock} le volume de roche connecté au tunnel, et ϕ la porosité de la roche (cf Tableau :3.3). Le CO₂ étant produit en permanence par la roche, on suppose que sa concentration dans la porosité de la roche reste égale à sa valeur initiale.

Le flux advectif entre le volume de roche et le tunnel, à travers une lame de roche d’épaisseur L, est donné par la loi de Darcy :

$$\Phi(t)_{adv} = S \frac{k}{\mu} C_i \frac{(P_{rock}(t) - P_{tun}(t))}{L} \quad (3.6)$$

où k est la perméabilité de la roche, μ la viscosité dynamique de l’air et C_i la concentration dans le réservoir d’où vient le flux. Si la différence de pression entre la roche et le tunnel est positive, le flux va de la roche vers le tunnel et C_i vaut $C_{rock}(t)$, si elle est négative, le flux est en sens inverse et C_i vaut C(t). Dans l’Equation 3.6, on fait l’approximation que le flux est constant dans la lame de roche, ie. qu’il s’équilibre à chaque instant avec le gradient de pression.

Les Équations 3.4, 3.5 et 3.6 sont discrétisées par différences finies avec un schéma explicite en temps. J’ai utilisé le logiciel Matlab pour calculer par itérations successives

les évolutions temporelles de la pression dans la roche et des concentrations dans la roche et dans le tunnel. Les valeurs des paramètres utilisés sont récapitulées dans le Tableau 3.3. Les valeurs de perméabilité et de porosité sont celles obtenues au Chapitre 2 à partir des fluctuations de pression. Les valeurs de certains paramètres, concentrations initiales dans la roche, volume du réservoir de roche, longueur équivalente de migration, ne sont pas connues *a priori*. On les détermine par essais successifs jusqu'à reproduire au mieux les données de concentrations dans le tunnel.

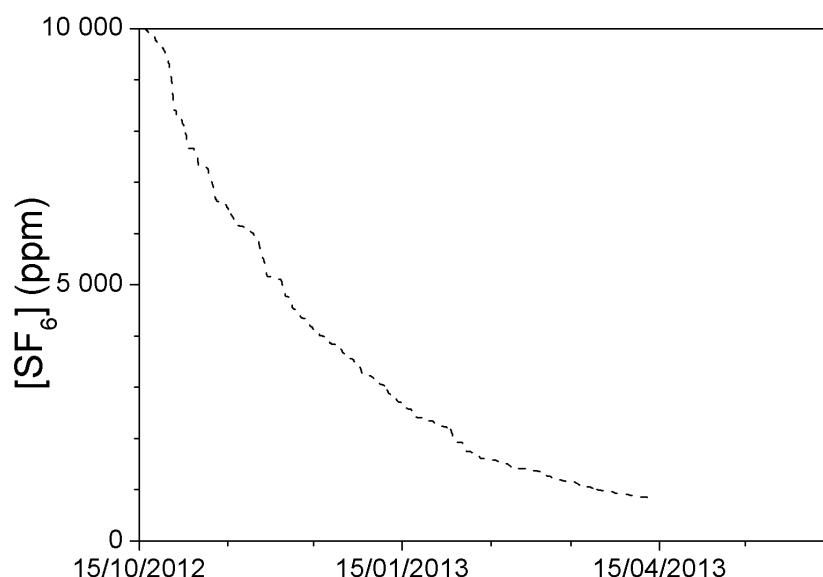


FIGURE 3.7 – Concentration en SF_6 dans la porosité de la roche calculée par un modèle 1D

FIGURE 3.7 – SF_6 concentration in the rock porosity, calculated with the model as described in the text.

3.3.2.3 Résultats et discussion

Les résultats du modèle sont présentés en Figures 3.4 et 3.5. Au premier ordre, le modèle reproduit le comportement observé pour la concentration en SF_6 , avec des augmentations transitoires corrélées à celles des baisses de pression. Les dates d'occurrence et les durées des pics de concentrations en SF_6 sont bien reproduites. Les intensités des pics calculés sont un peu inférieures et décroissent un peu trop rapidement par rapport à celles des pics mesurés (Figure 3.5). La concentration en SF_6 calculée dans la roche diminue rapidement, et n'est plus que de 1 000 ppm au bout des 8 mois considérés (Figure 3.7). Cette diminution du terme source est trop rapide par rapport à celle observée en Figure 3.5b. Ces différences pourraient être dues aux approximations faites dans le modèle : volume trop petit pour le réservoir de roche, ou échange trop important entre le tunnel et la roche.

Les augmentations importantes de la concentration en CO_2 résultant de la respiration des visiteurs dans le tunnel ne sont pas prises en compte dans le modèle. Les résultats du modèle durant ces périodes ne peuvent donc pas être comparés aux données. En dehors

de ces périodes, le modèle reproduit des pics de CO_2 dont l'amplitude correspond à celle des mesures, mais les dates d'occurrence et les durées de ces pics de CO_2 ne sont pas très bien reproduites.

L'établissement du modèle et des bilans de matière permet de mieux comprendre l'origine de la différence de comportement observée entre SF_6 et CO_2 . Le CO_2 est produit par la roche, sa ligne de base est élevée et augmentée transitoirement par la respiration des visiteurs dans le tunnel. Les flux advectifs qui s'ajoutent à cette ligne de base représentent un faible pourcentage d'augmentation, donc sont difficilement détectables. Le SF_6 n'étant pas produit par la roche et le tunnel étant ventilé, la ligne de base du SF_6 est quasiment nulle et les flux advectifs sont donc facilement détectables.

Entre le 15 avril et le 20 mai 2013, les augmentations importantes des concentrations mesurées en SF_6 et CO_2 ne sont pas reproduites par le modèle (Figure 3.4). Comme on l'a discuté précédemment, une surpression créée par des mouvements d'eau doit être ajoutée à la pression dans la roche dans l'Équation 3.6.

Les résultats présentés dans cette section pourront être élargis au ^{222}Rn , dont l'évolution de l'activité est régie par les mêmes processus. La désintégration radioactive est facilement prise en compte dans les Équations 3.4 et 3.5 avec l'ajout d'un terme identique à celui de la ventilation. Le développement d'un modèle 3D avec NUFT a été initié pour affiner la compréhension des processus et pour mieux reproduire les intensités des pics de concentration. Ce travail pourrait compléter utilement le modèle proposé par Richon (2011), comme discuté dans l'article Guillon *et al.* (soumis).

3.3.3 Déclenchement des anomalies en gaz par les mouvements d'eau

Chaque année, l'anomalie de gaz la plus importante dans le tunnel a lieu au début du printemps, lors de la fonte des neiges (Section 1.3 et Figure 1.19). En 2013, les mesures réalisées dans le tunnel, la chambre et les forages donnent une vision complète du phénomène et permettent de préciser la nature des mouvements d'eau qui en sont à l'origine. Ces mécanismes ont été proposés initialement par Richon (2011), et illustrés dans l'article Guillon *et al.* (soumis) présenté au paragraphe 3.3.1.

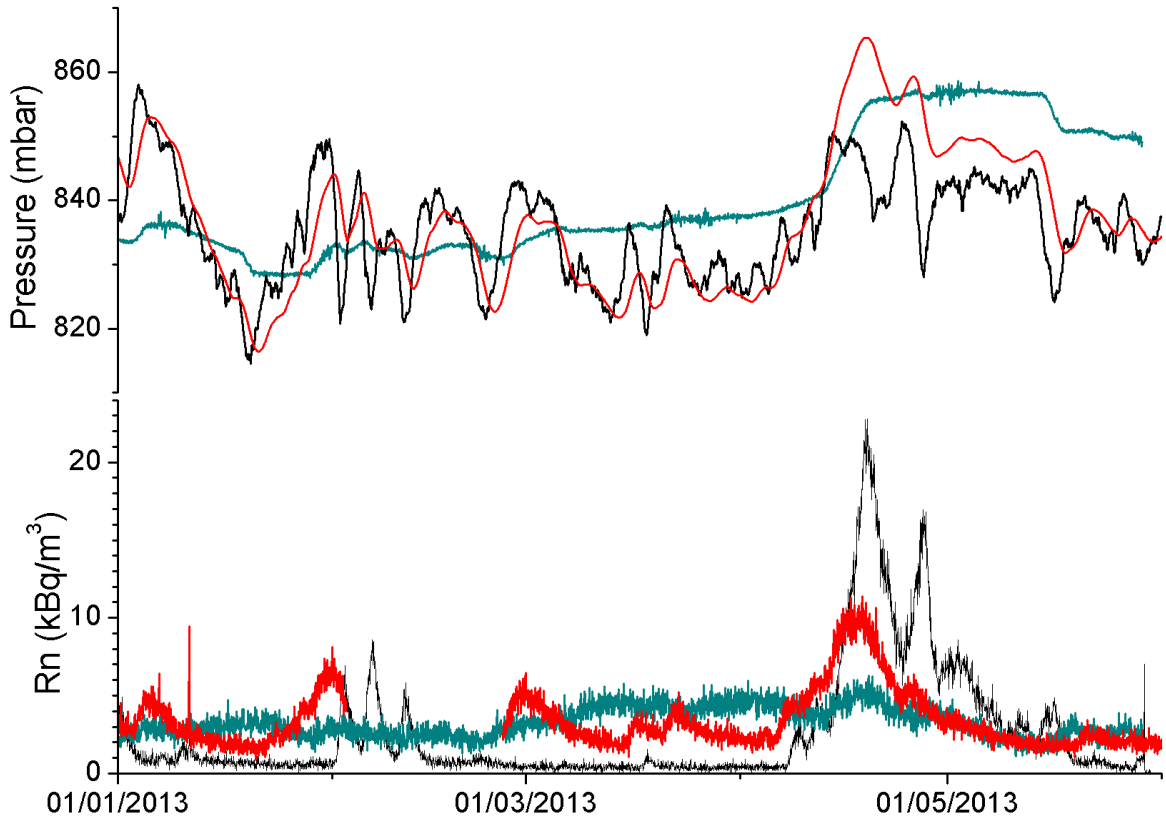


FIGURE 3.8 – Évolutions de la pression (haut) et de l'activité en radon (bas), dans le tunnel (noir), la chambre C (rouge) et dans le forage Perm 3 (bleu-vert). L'absence de mesure de radon dans la chambre est due à une défaillance du capteur télétransmis. Une autre mesure existe *in situ* qui sera récupérée dès l'ouverture de la porte de la chambre.

FIGURE 3.8 – *Evolutions of pressure (top) and radon activity (bottom), in the tunnel (black), the chamber (red) and the borehole Perm 3 (greenish blue). The lack of radon data in the chamber is due to a problem with the sensor. Another in situ measurement exists that will be obtained when the chamber door will be open.*

Le premier paramètre qui présente une variation anormale et qui a permis la découverte du phénomène d'anomalie est l'activité en ^{222}Rn (Trique *et al.*, 1999). Elle augmente fortement de manière transitoire dans le tunnel, mais aussi dans la chambre, comme le montre la Figure 3.8. En 2013, l'anomalie a lieu du 08 avril au 20 mai. Comme présenté dans l'article Guillon *et al.* (soumis) (Section 3.3.1), simultanément aux anomalies de radon sont mesurées des augmentations des concentrations en CO_2 et en SF_6 .

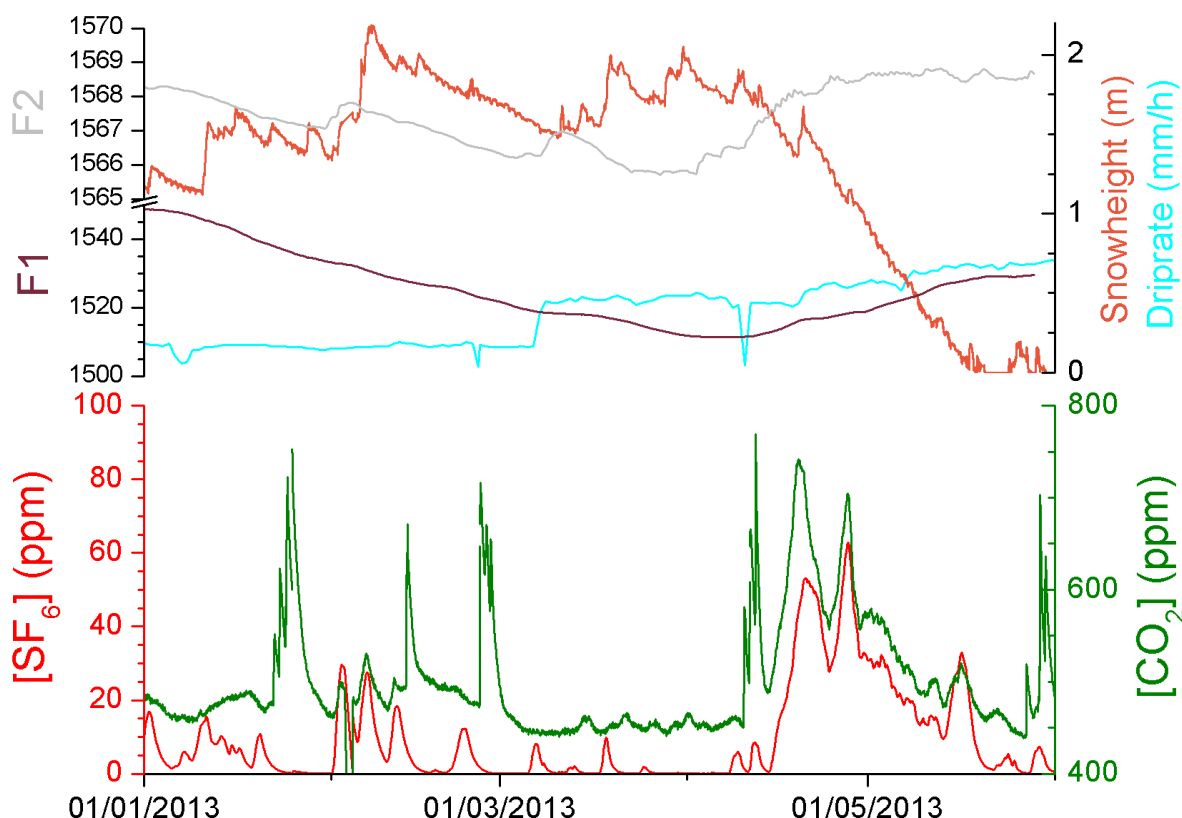


FIGURE 3.9 – En haut : hauteurs d’eau mesurées dans les forages F1 (gris foncé) et F2 (gris clair), hauteur de neige mesurée dans la carrière (orange) et débit d’eau dans la chambre au niveau d’une zone de fracture (bleu clair) ; en bas : évolutions des concentrations en CO_2 (vert) et en SF_6 (rouge) dans le tunnel.

FIGURE 3.9 – Top : water level measured in the boreholes F1 (dark grey) and F2 (light grey), snow height measured in the quarry (orange) and flow rate of water dripping in the chamber through a fracture zone (light blue) ; bottom : CO_2 (green) and SF_6 (red) concentrations in the tunnel.

dans le tunnel (Figure 3.9) et une augmentation de la pression dans la chambre C (Figure 3.8). Les mesures réalisées à proximité de la chambre dans le forage Perm 3, très peu perméable et non fracturé, confirment l’existence d’une surpression de l’ordre de 15 mbar (Figure 3.8), dans une zone de roche étendue. Cette surpression s’amortit beaucoup plus lentement dans le forage Perm 3 que dans la chambre, en raison de sa faible perméabilité. Comme on l’a vu ci-dessus, cette surpression correspond à un flux de gaz accru, venant de la porosité de la roche, avec des concentrations élevées en gaz. Dans le forage Perm 3, cette surpression n’est cependant pas accompagnée d’une augmentation de l’activité ^{222}Rn (Figure 3.8). L’activité en ^{222}Rn dans l’air qui alimente le forage doit donc être de l’ordre de 3 à 5 kBq.m⁻³. Comme le forage Perm 3 n’est pas fracturé, cette activité en radon est celle de l’air de la porosité matricielle. Les activités en radon atteintes dans la chambre et le tunnel pendant une anomalie sont beaucoup plus élevées que ces valeurs. L’activité en radon du flux de gaz qui alimente le tunnel pendant une anomalie est donc plus élevée que les valeurs mentionnées précédemment. De telles activités sont compatibles avec de l’air provenant des fractures.

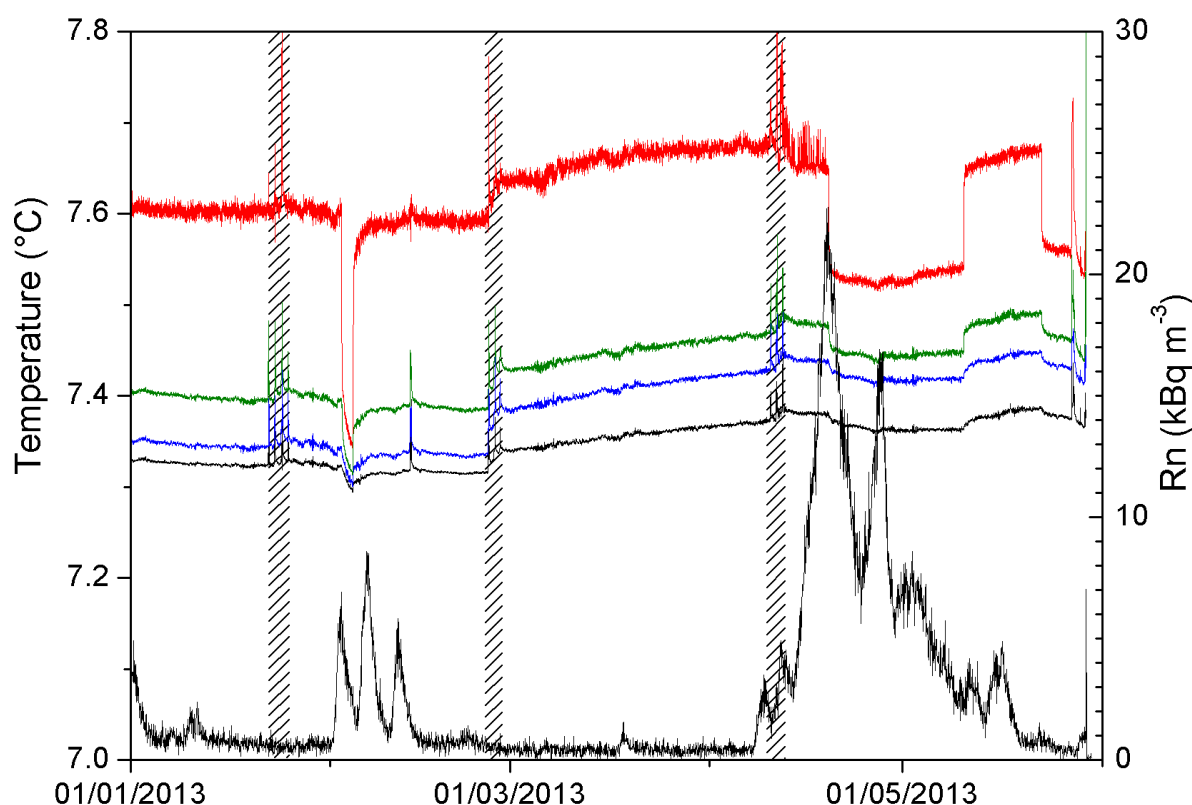


FIGURE 3.10 – Évolution de la température mesurée dans le tunnel à quatre hauteurs (10 cm du sol en noir, 71 cm en bleu, 131 cm en vert et 191 cm en rouge). La température augmente du sol vers le toit du tunnel. Les visites dans le tunnel, figurées par les domaines hachurés, perturbent temporairement la température. L'évolution de l'activité en radon mesurée dans le tunnel montre le lien entre les anomalies en radon et en température.

FIGURE 3.10 – *Evolution of the temperature measured in the tunnel at four heights (10 cm from the ground in black, 71 cm in blue, 131 cm in green, 191 cm in red). Temperature increases from the ground to the roof of the tunnel. Visits in the tunnel, indicated by the hatched zones, lead to transient perturbations of the temperature. Radon activity measured in the tunnel is also represented to show the relation between radon and temperature anomalies.*

Sur la Figure 3.10, on observe une baisse importante et rapide de la température dans le tunnel, du 18 avril au 10 mai. Ceci indique une arrivée d'air plus froid, en provenance de la roche. La baisse de température est plus marquée près du toit du tunnel, et devient quasiment nulle au sol, ce qui indique que l'air provient plutôt de la roche située au dessus du tunnel, et serait donc poussé par un mouvement d'eau descendant.

Les différentes concentrations en gaz et hauteurs d'eau présentées en Figure 3.9 permettent de préciser cette hypothèse. L'anomalie a lieu quand la couverture neigeuse commence à fondre de manière importante et continue, entraînant l'infiltration de quantités d'eau importantes dans la roche. La hauteur d'eau dans le forage F2, qui représente l'infiltration, augmente ainsi simultanément. Le débit d'eau mesuré au toit de la chambre

augmente également, mais cette augmentation est faible. Il existe donc un mouvement d'eau descendant, qui crée un mouvement d'air descendant. Pour finir, le niveau d'eau dans le forage F1, qui intègre à la fois l'infiltration mais aussi le niveau d'eau dans le lac de Roselend, augmente également pendant l'anomalie. Il existe donc un mouvement d'eau ascendant, nécessairement lié à l'infiltration, et aux variations intrinsèques du niveau du lac. Un rôle des mouvements d'air ascendants associés à ces mouvements d'eau n'est donc pas exclu, en accord avec le modèle proposé par Richon (2011) et Richon et Sabroux (in prep.).

D'après l'étude des corrélations croisées entre l'activité en ^{222}Rn dans le tunnel et les niveaux d'eau dans les forages réalisée par Poirel (2010), la corrélation est significative uniquement avec le niveau d'eau dans le forage F2, qui représente indirectement l'infiltration. Les anomalies en radon dans le tunnel sont ainsi au premier ordre corrélées aux événements d'infiltration d'eau, comme le montre la Figure 3.11 pour une période où les contributions de la pluie et de la neige à l'infiltration ont été calculées.

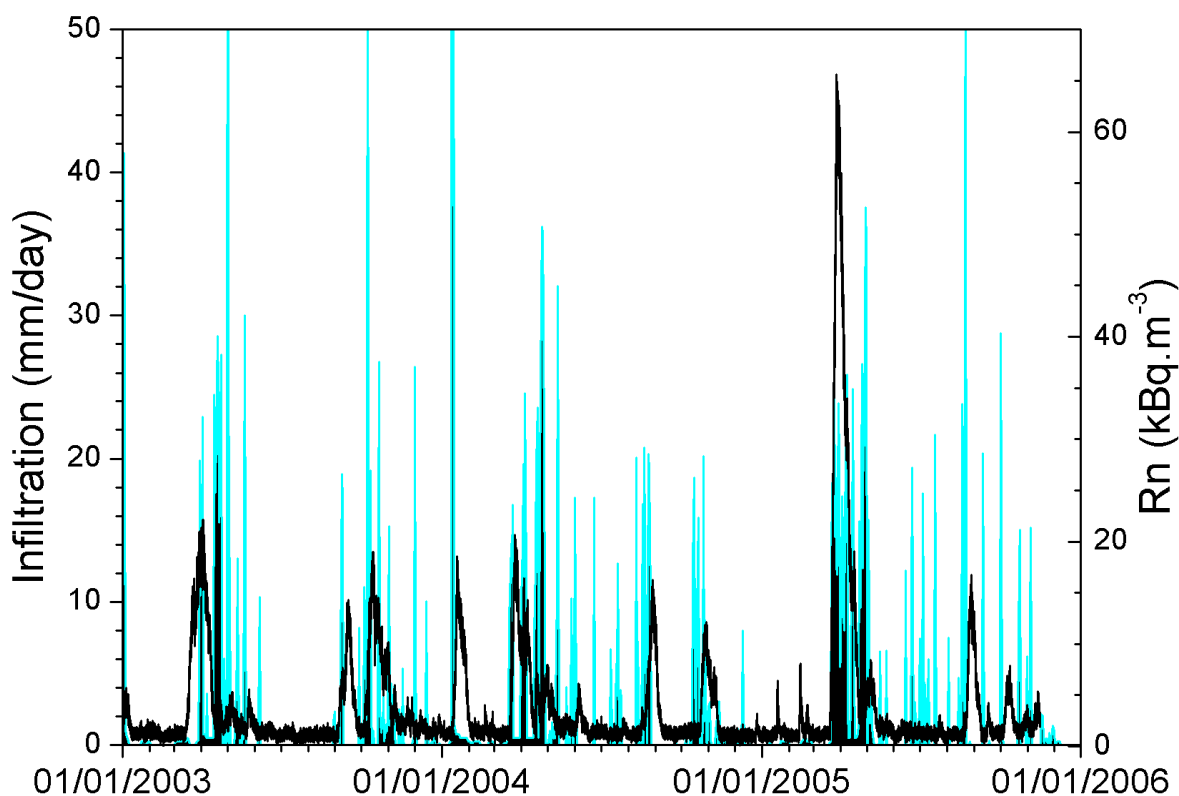


FIGURE 3.11 – Évolutions de l'activité en radon mesurée dans le tunnel (noir) et de l'infiltration (bleu) calculée en surface à partir des données météorologiques. Les pics d'activité en radon sont au premier ordre corrélés aux événements d'infiltration. Données de radon d'après P. Richon et données d'infiltration d'après D. Patriarche.

FIGURE 3.11 – Radon activity measured in the tunnel (black) and water infiltration calculated at the surface from meteorological data (blue). Peaks of radon activity are at first order correlated with infiltration events. Radon data from P. Richon, infiltration data from D. Patriarche.

Les différents éléments présentés ci-dessus montrent un lien temporel important entre

les mouvements d'eau et les anomalies en gaz observées au niveau du tunnel. Ces mouvements d'eau, en créant des mouvements d'air, permettent d'expliquer les variations mesurées des différents paramètres. Ces résultats confirment le modèle présenté dans Richon (2011) et Richon et Sabroux (in prep.), dans lequel les montées du niveau de la nappe, mesurées dans le forage F2 entraînent des mouvements d'air ascendants dans les fractures, qui sont à l'origine des anomalies en radon dans le tunnel. Les travaux réalisés par Perrier *et al.* (2009) sur la crête de Sur-Frêtes montraient également un contrôle de l'activité en radon du sol par l'infiltration d'eau de pluie et l'écoulement d'eau dans la nappe, mais également par les variations de température et de solubilité du gaz. Les rôles respectifs des mouvements d'eau ascendants et descendants restent cependant à préciser. Les résultats obtenus pendant cette thèse me semblent indiquer un rôle prépondérant de l'infiltration, c'est-à-dire des mouvements d'eau descendants de la carrière vers le tunnel, rapides et d'amplitude importante. Les mouvements ascendants de la nappe seraient une autre conséquence de l'infiltration d'eau, et ne seraient pas la cause principale des anomalies. L'intensité plus importante de l'anomalie de gaz observée chaque année au début du printemps (Figure 1.19) pourrait correspondre à la combinaison des mouvements ascendants et descendants, alors que les autres anomalies, d'intensité moindre, pourraient être dues aux seuls mouvements descendants. Le rôle de la déformation, comme envisagé dans Trique *et al.* (1999) semble être de second ordre. On sait par ailleurs que des mouvements d'eau peuvent avoir des effets sur les mesures locales d'inclinométrie (Fabian et Kumpel, 2003). Les mouvements d'eau pourraient ainsi être à l'origine à la fois de la déformation et des anomalies en gaz observées au Laboratoire Naturel de Roselend.

3.4 Complexité de la dynamique naturelle des gaz et de son suivi en surface

Trois moyens avaient initialement été choisis pour suivre la percée des traceurs et la dynamique des autres gaz en surface : le forage sub-horizontal SCH1, les 10 forages verticaux SC et les chambres d'accumulation en surface. Des mesures ont été initiées dans ces trois cas, mais les évolutions des gaz dans les forages SC et les flux de gaz du sol sont apparus très complexes.

L'instrumentation et le suivi en continu sur le long terme sont difficiles à mettre en place. Les conditions météorologiques avec un enneigement important limitent les mesures de flux de gaz à la surface. Les forages verticaux SC ne peuvent pas tous être instrumentés pour un suivi en continu des concentrations en gaz : certains forages se remplissent entièrement d'eau en quelques heures à quelques jours, d'autres ne sont pas assez perméables et les prélèvements d'air les vident rapidement. Sur les 10 forages SC réalisés dans la carrière, seuls 4 ont pu être instrumentés pour la mesure de l'activité en radon, dont seulement 2 pour la mesure des concentrations en CO_2 et SF_6 . Les résultats obtenus montrent une variabilité spatiale très importante, qui empêche d'identifier les mécanismes qui les contrôlent.

Le forage sub-horizontal SCH1 a finalement été l'ouvrage de prédilection utilisé pour l'observation de la restitution des traceurs lors des expériences de traçage. Le suivi des concentrations en gaz dans le forage a pu être réalisé sur le long terme. La perméabilité de la roche est suffisante pour permettre des prélèvements d'air, et la légère inclinaison du forage permet à l'eau d'infiltration de s'écouler pour conserver un espace d'air à analyser. Les résultats obtenus concernant la dynamique naturelle des gaz sont regroupés avec ceux concernant les percées des traceurs, au Chapitre 4.

Les observations à l'interface géosphère-atmosphère sont ainsi plus complexes que celles réalisées dans le tunnel. La forte variabilité du milieu géologique, en particulier de la perméabilité, des flux d'eau et de gaz, est un obstacle à l'utilisation des forages verticaux et des mesures en surface comme moyens de détection. L'étude de la migration des gaz dans les différents compartiments de la sub-surface qui constituent l'interface entre la géosphère et l'atmosphère est approfondie dans le cadre d'un post-doctorat (Claire Gréau) commencé en mai 2013.

3.5 Identification des sources de CO_2 par les isotopes stables du carbone

Le CO_2 est un gaz présent à la fois dans l'air, les sols et les roches, et issu de sources variées : géologiques (volcanisme, magmatisme, métamorphisme, érosion) ou biologiques (respiration animale, végétale et microbienne). Il est de plus facilement mesurable, et sa molécule, constituée de carbone et d'oxygène, possède des isotopes stables (^{13}C et ^{12}C , ^{18}O et ^{16}O) qui permettent de tracer les sources et les processus qui contrôlent sa distribution. Le ^{14}C est ici négligé. Le CO_2 est donc un gaz de grand intérêt qu'il est nécessaire d'étudier dans toute approche des gaz sur un site.

Cette section concerne le CO_2 présent naturellement au Laboratoire Naturel de Roselend. Dans la suite du bilan carbone réalisé par Dellinger (2009) et Pili *et al.* (2009) au Laboratoire Naturel de Roselend (cf Section 1.3), j’ai cherché à valider les différentes sources de CO_2 identifiées. Alors que les travaux précédents reposaient essentiellement sur l’étude de la phase eau, je me suis concentrée sur l’analyse du gaz CO_2 . La composition isotopique du carbone du CO_2 permet d’identifier ses différentes sources, de quantifier leurs proportions et d’identifier les processus physiques et chimiques mis en jeu.

L’analyse de la composition isotopique du CO_2 est classiquement réalisée par spectrométrie de masse à haute résolution (Isotope Ratio Mass Spectrometry, IRMS) sur des petits volumes de gaz (Verkouteren, 1999), mais cette analyse au laboratoire est coûteuse en temps, malgré le développement du couplage avec la chromatographie en phase gazeuse, qui permet d’analyser un échantillon par heure en moyenne (Schauer *et al.*, 2005). Depuis environ cinq ans, la spectroscopie d’absorption laser infrarouge (Isotope Ratio Infrared Spectroscopy, IRIS) est apparue comme une technologie prometteuse, permettant l’analyse de la composition isotopique du CO_2 en flux continu, sans purification et avec une mesure chaque seconde (Kerstel et Gianfrani, 2008). Le coût des instruments est par ailleurs beaucoup plus faible que celui des spectromètres de masse, et de nombreux laboratoires se sont équipés ces dernières années. Les performances réelles des instruments, justesse et précision, n’atteignent cependant pas encore celles de la spectrométrie de masse, et de nombreux biais et erreurs doivent être corrigés (Sturm et Knohl, 2010; Wen *et al.*, 2013).

Pendant cette thèse, j’ai utilisé deux analyseurs laser de la composition isotopique du CO_2 pour caractériser la composition isotopique du carbone du CO_2 dans les différents réservoirs du Laboratoire Naturel de Roselend. Il a d’abord fallu caractériser au laboratoire les performances des analyseurs, développer les protocoles de mesure, de correction et de raccordement aux standards internationaux. Les analyseurs laser de la composition isotopique du CO_2 ont ensuite été utilisés au Laboratoire Naturel de Roselend d’une part pour confirmer la nature des sources de CO_2 et chercher à identifier d’éventuelles variations des sources lors des anomalies et d’autre part comme moyen de détection de fuite pour la validation du protocole d’injection des traceurs dans la chambre.

Il avait été envisagé de réaliser un traçage avec du $^{13}CO_2$ depuis la chambre C vers la surface. Pour cela, l’IRIS aurait été une aide précieuse. L’IRIS constitue en effet un très bon outil pour la réalisation et le suivi d’un tel traçage, en permettant une mesure en continu, directement sur le site. Un exemple de traçage au $^{13}CO_2$ suivi par IRIS est présenté à la fin de ce chapitre. Cependant, cette hypothèse s’est avérée non envisageable, car les quantités de $^{13}CO_2$ à injecter dans la chambre C pour permettre une détection en surface par modification de l’isotopie du CO_2 existant dans le sol seraient beaucoup trop importantes et introduiraient une très forte surpression dans la chambre C.

3.5.1 *Using a laser-based CO_2 carbon isotope analyser to investigate gas transfer in geological media* (article)

Le contenu de cette section fait l’objet d’un article publié en 2012 dans Applied Physics B. Cet article concerne l’analyseur DLT-100 (Los Gatos Research), qui est la

première version commercialisée de cet analyseur. La caractérisation des performances de l'analyseur et des corrections nécessaires sont présentées, ainsi qu'une application dans le domaine géologique avec la mesure du flux de CO_2 dans le forage Perm 4.

Ce type d'analyseurs a été conçu pour mesurer le CO_2 atmosphérique, avec une gamme de variation des concentrations très réduite. Au Laboratoire Naturel de Roselend, les analyseurs sont utilisés dans des conditions difficiles et pour mesurer des concentrations en CO_2 variant de 300 à 30 000 ppm, ce qui explore les limites des performances de ce type d'instruments.

Using a laser-based CO₂ carbon isotope analyser to investigate gas transfer in geological media

S. Guillon · E. Pili · P. Agrinier

Received: 7 September 2011 / Revised version: 13 February 2012 / Published online: 21 March 2012
© Springer-Verlag 2012

Abstract CO₂ stable carbon isotopes are very attractive in environmental research to investigate both natural and anthropogenic carbon sources. Laser-based CO₂ carbon isotope analysis provides continuous measurement at high temporal resolution and is a promising alternative to isotope ratio mass spectrometry (IRMS). We performed a thorough assessment of a commercially available CO₂ Carbon Isotope Analyser (CCIA DLT-100, Los Gatos Research) that allows in situ measurement of $\delta^{13}\text{C}$ in CO₂. Using a set of reference gases of known CO₂ concentration and carbon isotopic composition, we evaluated the precision, long-term stability, temperature sensitivity and concentration dependence of the analyser. Despite good precision calculated from Allan variance (5.0 ppm for CO₂ concentration, and 0.05 ‰ for $\delta^{13}\text{C}$ at 60 s averaging), real performances are altered by two main sources of error: temperature sensitivity and dependence of $\delta^{13}\text{C}$ on CO₂ concentration. Data processing is required to correct for these errors. Following application of these corrections, we achieve an accuracy of 8.7 ppm for CO₂ concentration and 1.3 ‰ for $\delta^{13}\text{C}$, which is worse compared to mass spectrometry performance, but still allowing field applications. With this portable analyser we measured CO₂ flux degassed from rock in an underground tunnel. The obtained carbon isotopic composition agrees with IRMS measurement, and can be used to identify the carbon source.

1 Introduction

Stable carbon isotopes are a key to study gas exchanges and the carbon cycle in the atmosphere as well as in the geosphere [1, 2]. CO₂ carbon isotope analysis is usually performed by Dual-Inlet Isotope Ratio Mass Spectrometry on pure CO₂, with a high accuracy of typically 0.01 ‰ (1 σ) [3]. However, this technique necessitates time-consuming CO₂ purification. For more than ten years, He-continuous-flow isotope ratio mass spectrometry (CF-IRMS) has allowed measurement of $\delta^{13}\text{C}$ in small amounts of CO₂ in an air matrix, with higher sample throughput and a good precision of typically 0.08 ‰ (1 σ) [4]. Although both these techniques are very precise, they are based on ion mass spectrometry which necessitates heavy and delicate hardware and operation in highly controlled conditions (very small ion currents $<10^{-10}$ A and very high vacuum conditions $<10^{-8}$ mbar). These conditions are very difficult to achieve outside of a well-conditioned laboratory.

Concurrently, laser-based CO₂ Carbon Isotope Analysers (CCIAs) have been proposed for several years. These instruments measure the isotope content of CO₂ based on infrared absorption spectroscopy. One main advantage of CCIAs is that there is no need to purify CO₂ from other air components. Moreover, the air is analysed in continuous flow, not in batch samples, with a high measurement rate up to 1 Hz. These simplified operating conditions led to the development of research instruments for volcanic [5] or atmospheric monitoring [6, 7]. Field-deployable CCIAs have subsequently become commercially available for continuous measurements of CO₂ concentration and isotopic composition. These analysers, primarily devoted to atmospheric CO₂, have already found interesting applications, for example in soil sciences [1], ecosystem research [8] and carbon sequestration monitoring [9, 10]. In this study, we focus

S. Guillon (✉) · E. Pili
CEA, DAM, DIF, 91297 Arpajon, France
e-mail: sophie.guillon@cea.fr
Fax: +33-1-69267065

S. Guillon · E. Pili · P. Agrinier
Institut de Physique du Globe de Paris, 1 rue Jussieu, 75005 Paris, France

on measurements in geological media where conditions are specific: large variations in CO₂ concentrations (from 0 ppm at the beginning of a flux measurement, up to 30000 ppm in soil gas), large range of $\delta^{13}\text{C}$ values (from -27‰ for plant respiration [11] to -1.5‰ for magmatic CO₂ [12]), water vapor content up to 100 % RH, and possibly limited sample volume.

As is always the case for very young technologies, only a reduced set of working conditions have been tested until now. CCIAAs have been designed to be applied to atmospheric conditions with around 400 ppm of CO₂. Little is known about the analytical sensitivity of such instruments in response to non-standard conditions. A detailed review of the system is necessary before it may be used as a reliable and accurate research instrument. Here we assess the performance of one commercially available analyser, the CO₂ Carbon Isotope Analyser CCIA DLT-100 (Los Gatos Research) under geological conditions, and present a field application. McAlexander et al. [10] presented impressive performances for this instrument, demonstrating an accuracy of 0.05 ppm for CO₂ concentration and 0.2 ‰ for $\delta^{13}\text{C}$ (1σ for 60 s), but only under a limited range of CO₂ concentrations.

2 Materials and methods

2.1 Commercial CO₂ carbon isotope analyser

The CCIA is based on Off-Axis Integrated Cavity Output Spectroscopy, a technique described in detail in Baer et al. [13]. The sample gas at atmospheric pressure is drawn through the 0.9 L optical cell [23] of the analyser by an external diaphragm vacuum pump (KNF). This absorption cell is maintained at low pressure (38 torr) and constant temperature (45 °C). Sample flow rate can be varied by adjusting the speed of the pump. All measurements were made at maximum speed, corresponding to a sample input flow rate of 0.6 L/min. The wavelength of a diode laser operating in the near infrared region is tuned to scan the absorption features of ¹²CO₂ and ¹³CO₂. Light transmitted through the cell is detected to obtain the absorption spectrum, which is automatically fitted by the analyser and used to determine the mixing ratios of ¹²CO₂ and ¹³CO₂. CO₂ concentration and carbon isotope composition, expressed as $\delta^{13}\text{C}$ value in ‰ relative to the V-PDB standard, are deduced from both mixing ratios. All measurements were made at 1 Hz, the maximum measurement rate. We used the Multi Inlet Unit (MIU), an optional device available from Los Gatos Research, which allows automatic switching between 16 different sampling ports.

Gas is dried before entering the analyser to prevent water absorption interference [14]. According to the manufacturer, the sensitivity to water vapour is -0.4‰ per 1000 ppm H₂O

for $\delta^{13}\text{C}$ value, and we found that it amounts to -0.3 ppm CO_2 per 1000 ppm H₂O for concentration, and -0.2‰ per 1000 ppm H₂O for $\delta^{13}\text{C}$ value. Although the instrument is now supplied with a sample drying system, this was not the case at the time of purchase; therefore, we used an alternative drying system composed of two Nafion membranes (Permapure ME and Permapure MD). Using this system, water vapour was reduced to around 2000 ppm. Reference gases (see below) were also measured using this drying system. As they were initially dry, they got humidified, and finally also contained around 2000 ppm water vapour. All measured gases, references and samples, thus retained the same concentration of water vapour; therefore, we didn't take into account its effect in the following analyses.

2.2 Reference gases

Seven commercial reference gas cylinders, lettered A to G, of CO₂ mixture in synthetic air (N₂ + 20 % O₂) were used in this study. They span a large range of CO₂ concentrations (392 to 17800 ppm) and $\delta^{13}\text{C}$ values (-35 to -44‰). CO₂ concentrations were determined by the manufacturer using gravimetric method, with an uncertainty of 2 %. For cylinders A, B and C, CO₂ concentrations were also measured at LSCE (France) by gas chromatography and were calibrated against the international WMO mole fraction scale for carbon dioxide in air [15]. The obtained values are not significantly different from those certified by the manufacturer, albeit far more precise. We measured the $\delta^{13}\text{C}$ values of the seven cylinder gases by CF-IRMS (Gas Bench II and Delta^{Plus} XP, Thermo Finnigan). Table 1 shows the values which are taken as references for calibration and estimation of accuracy.

2.3 Internal and external calibration

Because of instrumental drift and sensibility to changing environmental parameters, frequent calibration is necessary to ensure accurate measurements. We distinguish between internal and external calibration. Internal calibration is performed directly within the analyser. A single reference gas cylinder is sampled and the reference CO₂ concentration and $\delta^{13}\text{C}$ value are entered in the software. Before each measurement sequence, we performed internal calibration with cylinder B (Table 1). As a day-by-day quality control of the analyser, this same cylinder was measured just after calibration.

As shown hereafter, measurements have to be corrected for concentration dependence and instrumental drift. This external calibration can be applied from regular measurements of reference gases. The MIU allows alternating samples and reference gases, and thus long-term monitoring without any permanent operator assistance.

Table 1 CO₂ concentration and carbon isotope ratios of reference cylinders. (N₂ = 80 %, O₂ = 20 %, H₂O < 100 ppm)

Cylinder	Gravimetry ^a	GC ^b	CF-IRMS	LGR CCIA DLT-100 ^c	$\delta^{13}\text{C}^{\text{d}}$ (‰ VPDB)
	[CO ₂] (ppm)	[CO ₂] (ppm)	$\delta^{13}\text{C}$ (‰ VPDB)	[CO ₂] (ppm)	
A	392 ± 7.8	391.1 ± 0.10	−43.41 ± 0.08	395.27 ± 4.42	−42.94 ± 0.60
B	503 ± 10.1	501.5 ± 0.20	−35.46 ± 0.22	507.43 ± 5.70	−35.15 ± 1.27
C ^e	892 ± 17.8	890.3 ± 0.75	−44.61 ± 0.04	902.28 ± 11.45	−43.94 ± 0.19
D	1920 ± 38.4		−43.99 ± 0.11	1969.88 ± 26.39	−43.57 ± 0.37
E	1980 ± 39.6		−43.99 ± 0.08	1984.98 ± 23.71	−44.39 ± 0.34
F	5890 ± 117.8		−39.39 ± 0.05	5905.58 ± 71.56	−37.98 ± 0.32
G	17800 ± 356.0		−39.37 ± 0.14	18310.93 ± 222.35	−38.96 ± 0.29

^aConcentration determined by gravimetric methods by the cylinder manufacturer, with a 2 % uncertainty

^bConcentration measured by Gas Chromatography at LSCE (France), linked to the WMO scale

^cReference gases are measured at 1 Hz during 5 min. Mean and standard deviation (1 σ) of the last 2 min are reported here

^d $\delta^{13}\text{C}$ value after correction of the concentration dependence as described in the text

^e10 ppb of SF₆ were measured by GC at LSCE in cylinder C

2.4 Performance assessment

In the following, we test four properties of the analytical system: precision, concentration dependence, accuracy and long-term stability.

The precision and noise of optical analysers can be determined by estimating the Allan variances of the CO₂ concentration and $\delta^{13}\text{C}$ value [6, 16, 17]. Allan deviation (square root of the Allan variance) expresses the measurement precision as a function of the averaging time. Reference cylinders D and G were analysed with the CCIA over a 3 hours period and the Allan deviation was calculated for both CO₂ concentration and $\delta^{13}\text{C}$ value.

The instrumental response to changing CO₂ concentration at constant isotopic composition was determined by progressively diluting reference gases D and G with CO₂-free air, using two mass flow controllers (SLA-7850, Brooks). The resulting mixtures were analysed in the CCIA.

In order to test the analyser accuracy, all reference gases were analysed for 5 min, switching automatically from one gas to another with the MIU. The first three minutes of each measurement were discarded because of response and stabilization time; the last two minutes were averaged.

The long-term stability of the analyser was estimated by measuring cylinder F for 5 min, every hour, for a period of 72 hours. Ambient air from the lab was sampled the rest of the time.

2.5 Field application in the Roselend Natural Laboratory

Our application of CO₂ concentration and isotope ratio monitoring in geological media consists of CO₂ flux measurement in an underground research laboratory located in the French Alps [18]. Pili et al. [19] demonstrated that the

rock surrounding the tunnel is a net source of CO₂ to the atmosphere, due to many geochemical processes linked to weathering. CO₂ degassing was therefore expected. The carbon isotopic composition of degassing CO₂ was needed to better understand its source and the geochemical processes that could convert it into carbonates and dissolved gases.

The closed accumulation chamber method has classically been used to measure soil CO₂ flux and the isotopic composition of the source [12]. We adapted this method to a sub horizontal borehole (2.2 m long, 86 mm diameter) drilled into the tunnel wall. Using an inflatable packer, an accumulation volume was isolated inside the rock. The borehole was first flushed with CO₂-free air for 30 to 45 min, in an open-system, until CO₂ concentration decreased to less than 50 ppm. CO₂ accumulation and $\delta^{13}\text{C}$ were then measured in a closed system for 2 hours using the CCIA, whose exhaust was looped back into the borehole to minimize depressurization of the borehole that would modify CO₂ transfer from the rock. A rubber septum sampler port was installed on a tee. Using an air-tight syringe, two discrete vials were sampled at the end of the experiment and subsequently analysed by CF-IRMS.

When working in a closed-system, leakage and contamination have to be taken into account, especially when working in a high CO₂ environment, such as poorly ventilated underground cavities. In such cavities, CO₂ concentration can easily reach 5000 ppm due solely to the presence of operators. To quantify ambient CO₂ contamination by leakage in the measurement line, we disconnected it from the borehole, which produced CO₂. The line was first flushed with CO₂-free air, and then ran in closed-loop. The increase in CO₂ concentration was measured with the CCIA.

3 Results

3.1 Performance in the laboratory

Figure 1 shows the Allan deviation as a function of averaging time, for both CO₂ concentration and $\delta^{13}\text{C}$. For each averaging time, Allan deviation measures the analysers intrinsic precision. For cylinder G, the Allan plots exhibit the typical V shape obtained for spectroscopic analysers [16, 17]. Precision first increases with the averaging time, down to 2 ppm and 0.04 ‰, the best precision being obtained with 200 s averaging. For longer averaging times, precision decreases because of instrumental drift. For cylinder D with lower CO₂ concentration, precision for $\delta^{13}\text{C}$ value decreases to only 0.50 ‰ and cannot be improved with longer averaging time. This observation has not been explained, yet. We used an averaging time of 60 s which results in a precision of 5 ppm for CO₂ concentration and 0.05 ‰ for $\delta^{13}\text{C}$ value (1σ for cylinder G).

Figure 2 displays the measurements of cylinder B after each internal calibration. Without correction for temperature or concentration dependence, the standard deviation (1σ) of each measurement and the shift between the measured and the reference values directly serve as a check of the analyser

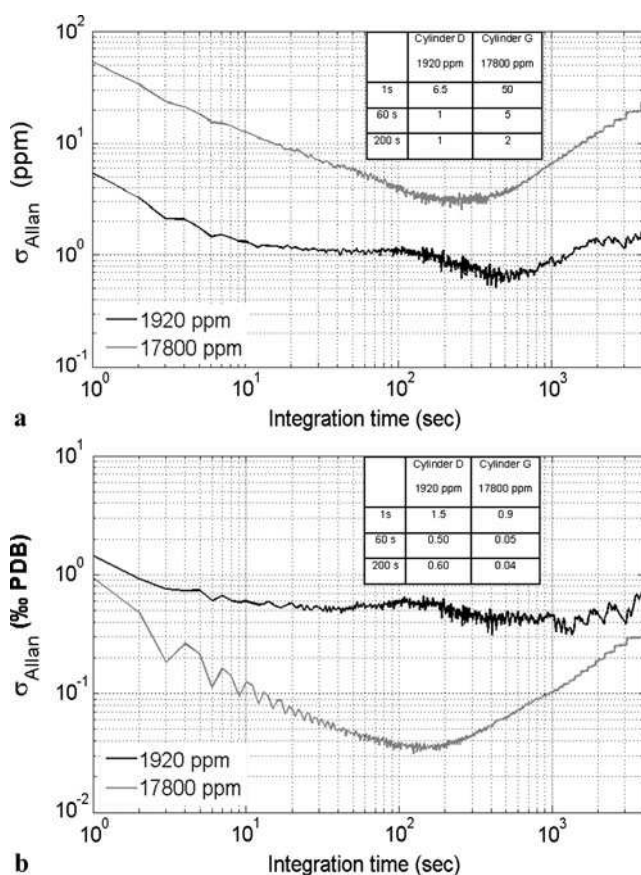


Fig. 1 Allan plots for CO₂ concentration (a) and $\delta^{13}\text{C}$ value (b). Black: cylinder D (1920 ppm). Grey: Cylinder G (17800 ppm)

state. The standard deviations (1σ) of all measurements are 0.37 ppm for CO₂ concentration and 0.19 ‰ for $\delta^{13}\text{C}$ value, which is an estimation of the long-term reproducibility of the analyser.

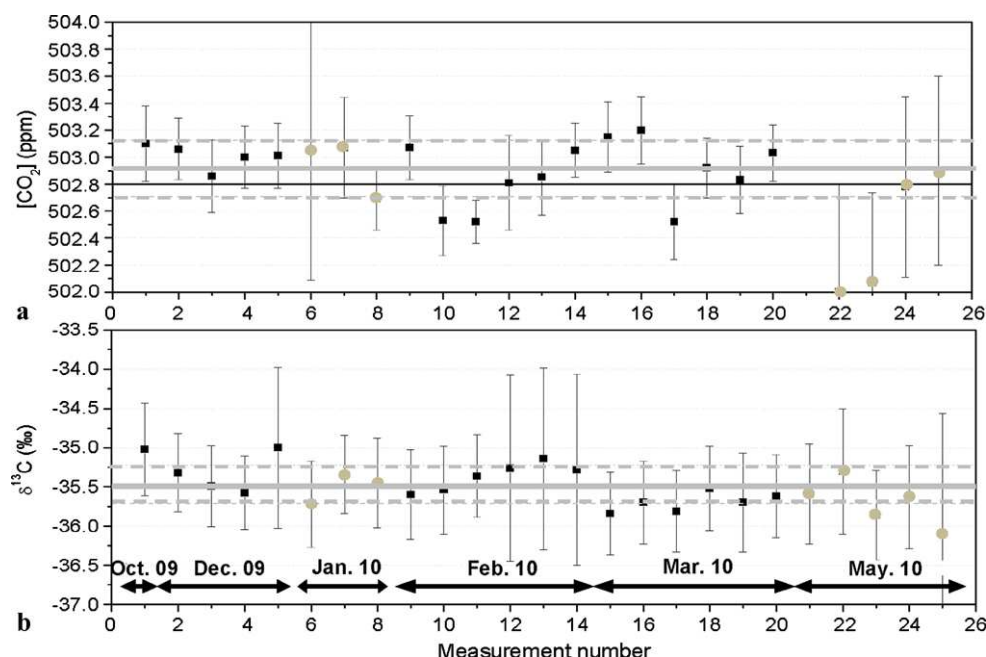
The dependence of $\delta^{13}\text{C}$ measurement on CO₂ concentration is given as the difference between the CCIA measurement and the reference $\delta^{13}\text{C}$ value (Fig. 3). A pronounced non-linearity is observed especially in the range 300–2000 ppm. The curve which we obtained has a shape similar to that obtained by Sturm et al. [20] for $\delta^2\text{H}$ measured using the Los Gatos Research Water Vapour Isotope Analyser, based on the same physical principle. The two curves obtained from cylinders D ($\delta^{13}\text{C} = -43.99$ ‰) and G ($\delta^{13}\text{C} = -39.37$ ‰) overlap well within their uncertainties in the concentration range 1000–2000 ppm. This shows that this concentration dependence of the measured $\delta^{13}\text{C}$ values does not depend on the isotopic composition of the CO₂ in the range -44 to -39 ‰. Several determinations of this curve over a one month period reveal that its global shape is retained, but it shifts by up to 1 ‰. For our applications, we worked exclusively in the range 300–2000 ppm. Lacking any physical model for this non-linearity, we chose to fit the experimental curve in this range with a polynomial. According to a χ^2 test, a fifth order polynomial is sufficient. This fit provides a calibration curve (Fig. 3(b)) which is used to correct the sample $\delta^{13}\text{C}$ values for non-linearity.

Table 1 summarizes the results of the reference gas measurements. Figure 4 shows the agreement between measured and reference CO₂ concentration values. Accuracy, defined as the standard deviation of the residuals, is 8.7 ppm for CO₂ concentration in the range 300–2000 ppm.

Figure 5 shows the agreement between measured and reference $\delta^{13}\text{C}$ values. In the range 300–2000 ppm, accuracy for raw measurements is 2.7 ‰. After correction for concentration dependence as described above, the accuracy is improved to 1.3 ‰ for $\delta^{13}\text{C}$ (1σ of residuals).

We explored the system stability by frequently analysing reference gas F. As illustrated in Fig. 6, instead of a regular drift, a diurnal cycle for both CO₂ concentration and $\delta^{13}\text{C}$ value is observed. This cycle is strongly correlated with a similar diurnal cycle for cell temperature. Temperature in the laboratory also follows a diurnal cycle with an amplitude of up to 4 °C. This is certainly the cause of the cell temperature variation. Both CO₂ concentration and $\delta^{13}\text{C}$ value vary linearly with the cell temperature. The dependence is respectively 16.7 ppm and -1.3 ‰ per 0.1 °C in the cell. For long-term monitoring, we thus correct the measurements for variations in cell temperature. All measurements of CO₂ concentration and $\delta^{13}\text{C}$ value are normalized to a reference temperature, chosen as the mean temperature of the measurements (in this case 46.0 °C). The diurnal cycle is thus suppressed (Fig. 6). The obtained stability over 72 h is found to be ± 8.0 ppm for CO₂ concentration and ± 0.52 ‰ for $\delta^{13}\text{C}$ value (1σ).

Fig. 2 CO₂ concentration (a) and $\delta^{13}\text{C}$ value (b) measured for cylinder B immediately after internal calibration with this same gas. Each point represents the mean and standard deviation of 120 s of measurement. Measurements obtained in the field are indicated by grey circles. Grey lines are the mean (thick) and standard deviation (dotted) of all measurements. Horizontal black lines are reference values. For $\delta^{13}\text{C}$, the mean and reference values are superimposed



3.2 Field application

Contamination tests show a CO₂ increase rate of 100 to 150 ppm/1000 s in the measurement line when it is connected as a closed-loop. During the flux measurement the 7 L packed-off borehole is connected to the line, which increases the volume of the line by around ten times. A precise quantification of the contamination rate is beyond the scope of this paper, we, however, estimated it to be ten times lower, i.e. around 10 ppm/1000 s.

As shown, temperature dependence is a major issue. In the tunnel, temperature is stable and constant at 7 °C (within 0.2 °C), which considerably reduces the potential instrumental drift. As the flux measurement must be performed in a closed system, it is not possible to measure a reference gas with the CCIA without contaminating the borehole. As the time required for flux measurement is less than 4 hours the instrumental drift is considered to be negligible and internal calibration at the beginning of the measurement is sufficient.

Figure 7 shows the result of the CO₂ flux measurement in one borehole. Because of the concentration dependence previously determined, $\delta^{13}\text{C}$ values of raw data have to be corrected using the calibration curve. In the first 50 min, CO₂ concentration increase can be considered linear. The initial CO₂ increase rate is 40 ppm/1000 s, only four times higher than the estimated contamination rate. The isotopic composition of CO₂ in the ambient air was measured by CF-IRMS and is around -22.6 ‰, quite similar to the composition of the CO₂ in the line. The potential effects of contamination can thus be neglected in this case. The CO₂ source is supposed to be of constant isotopic composition, this is sup-

ported by an almost constant corrected isotopic composition of the carbon source of -23.7 ± 0.5 ‰ (1σ). The late increase of 3 ‰ in the measured $\delta^{13}\text{C}$ value after 190 minutes may indicate a variation in the source. One main advantage of the CCIA is the capability to measure such evolution. Two discrete samples taken at the end of the measurement and analysed by CF-IRMS gave a mean $\delta^{13}\text{C}$ value of -21.9 ± 0.2 ‰ (1σ), fully consistent with the CCIA result, as shown in Fig. 7(b).

4 Discussion

4.1 Performance and practical use of the analyser

As shown by the computed Allan deviation (Fig. 1), the averaging time must be chosen as a trade-off between precision and temporal drift. An averaging time of 60 s allows a high temporal resolution with a precision of 0.05 ‰ for 17800 ppm, a performance comparable to mass spectrometry. With the same instrument, McAlexander et al. [10] found the same precision of 0.05 ‰ for 60 s averaging time, but in the range 378–944 ppm. We show that precision decreases when CO₂ concentration decreases, and we have no explanation for the better performance obtained by McAlexander et al. [10]. All sources of uncertainty and their magnitude are summarized in Table 2. The short-term precision from Allan deviation is often given as the sole performance indication [10], but the main sources of error on the $\delta^{13}\text{C}$ value appear to be temperature and concentration dependences. As demonstrated by comparison with CF-IRMS

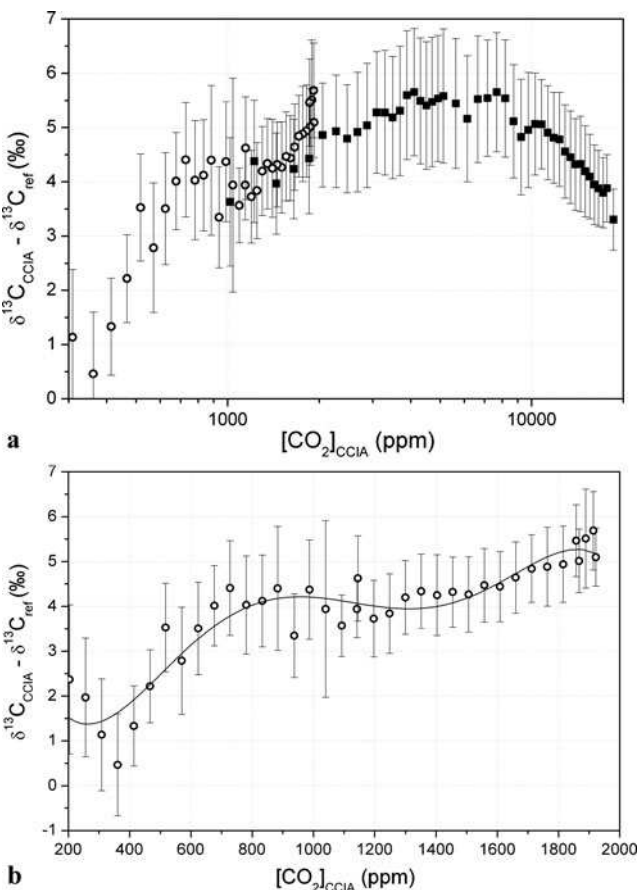


Fig. 3 (a) Non-linearity of $\delta^{13}\text{C}$ in the range 200–20000 ppm. Data from reference cylinders D (circles) and G (squares) progressively diluted with CO_2 -free air. (b) Non-linearity of $\delta^{13}\text{C}$ in the range 200–2000 ppm (cylinder D only) with a fifth order polynomial fit of the data (black line). This fitting curve is used as a calibration curve to correct for non-linearity

Table 2 Summary of the different sources of uncertainty in measurements with the CCIA DLT-100

Source of uncertainty	Estimated uncertainty	
	$[\text{CO}_2]$ (ppm)	$\delta^{13}\text{C}$ (‰ VPDB)
Short-term precision ^a	5.0	0.15
Concentration dependence ^b		0 to 4.5
Temperature dependence and long term stability ^c	8	0.5
Overall accuracy after processing	8.7	1.3

^aAllan deviation at 60 s averaging for 17800 ppm of CO_2
^bIn the range 300–2000 ppm
^c1 σ for 72 hours of measurements, after correction of temperature effects

measurements during our field application, and considering these uncertainties, CCIA results can be considered accurate and reliable.

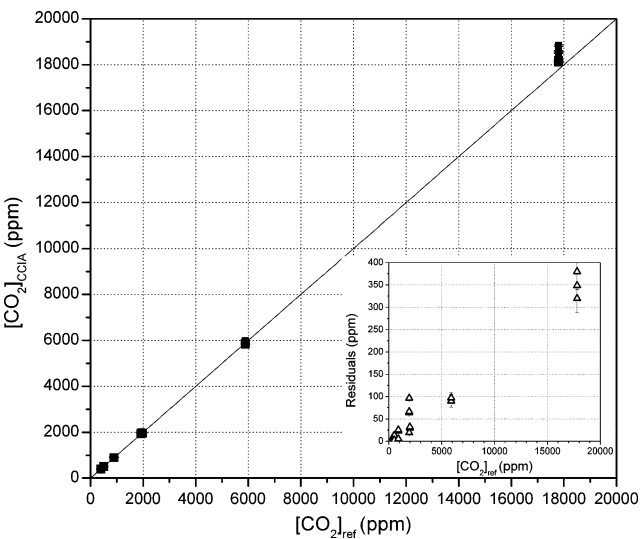


Fig. 4 Linear relationship between CO_2 concentrations measured by the CCIA DLT-100 and reference values for all reference cylinders (squares). Inset: residuals defined as $[\text{CO}_2]_{\text{CCIA}} - [\text{CO}_2]_{\text{ref}}$ (triangles)

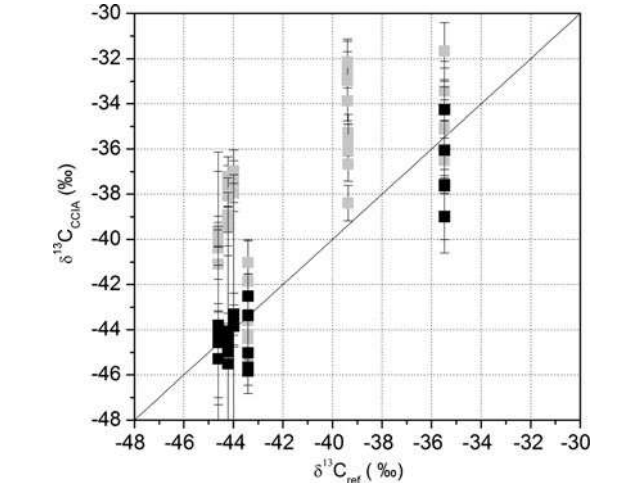


Fig. 5 Calibration of the $\delta^{13}\text{C}$ values. Grey squares are raw measurements. Black squares are corrected for CO_2 concentration dependence using the fitted curve in Fig. 3(b)

Measurements have to be normalized to international reference scales. These are the WMO scale for CO_2 concentration [21], and the VPDB scale for $\delta^{13}\text{C}$ value [22]. The $\delta^{13}\text{C}$ value can be easily normalized with CF-IRMS using calcite working standards. CO_2 concentration is measured by infrared spectroscopy or gas chromatography, and normalized to the WMO scale using standard gases. The WMO scale is not defined for concentrations above 900 ppm [15], decreasing accuracy in this range.

Temperature in the cell appears sensitive to ambient room temperature, and light absorption depends on temperature. The analyser software corrects light absorption for cell temperature fluctuations, but it seems that a complete and accurate correction is not achieved. This temperature sensitivity

Fig. 6 Long-term measurement of cylinder F. *Black squares and error bars* are respectively the average and standard deviation of 60 s measurements made every hour, for CO₂ concentration (**a**) and $\delta^{13}\text{C}$ value (**b**). Temperature of the cell is plotted as a *dotted line* (**b**). The diurnal cycle for both CO₂ concentration and $\delta^{13}\text{C}$ value is due to temperature variations in the optical cell

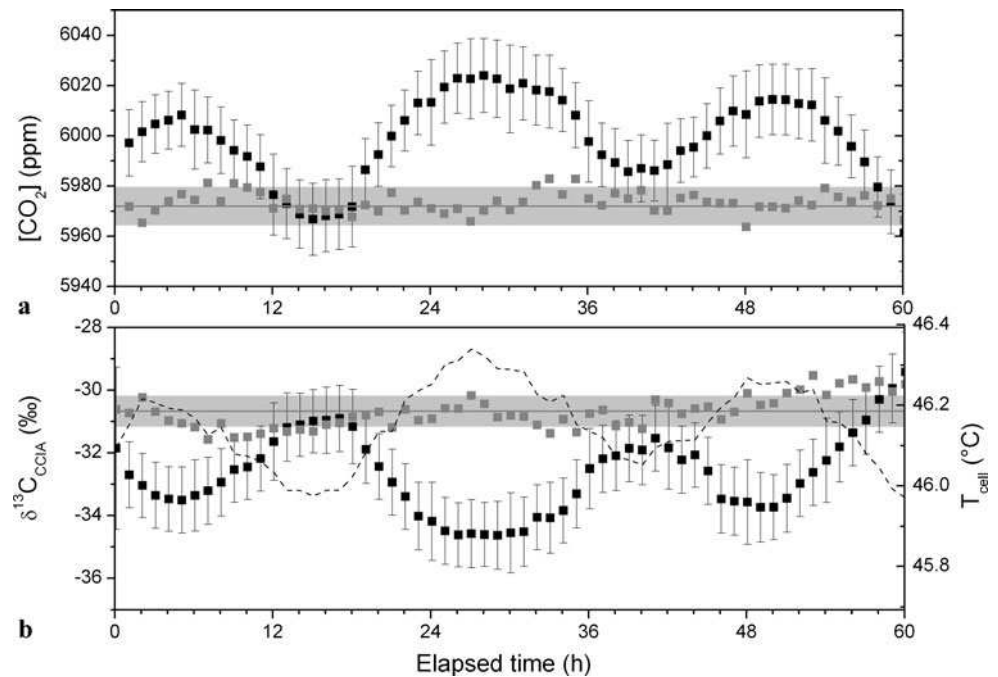
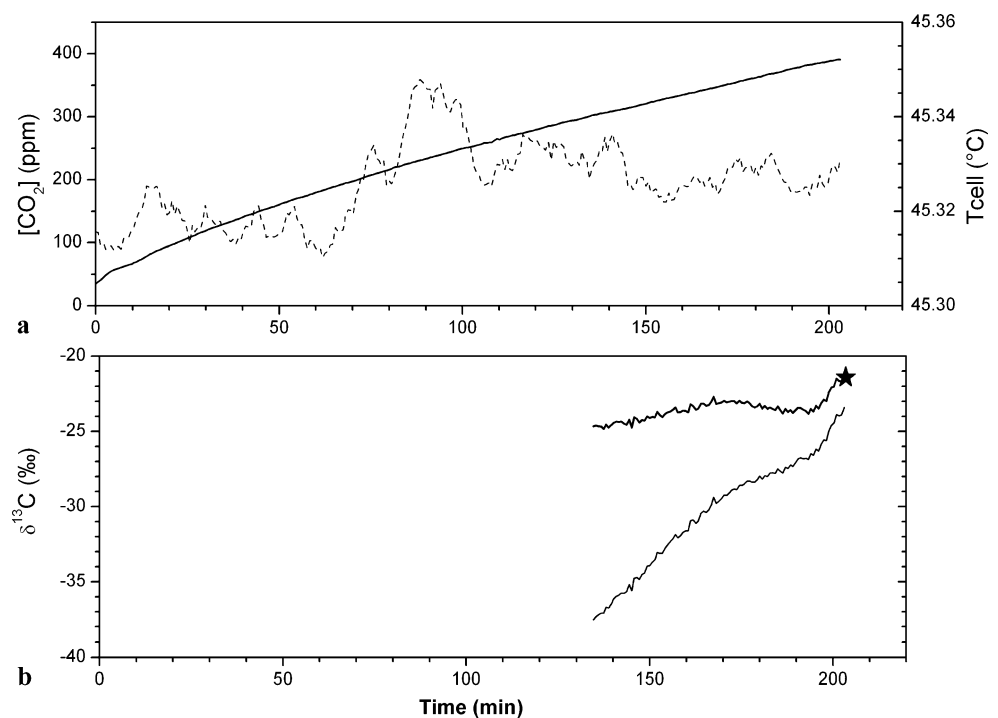


Fig. 7 CO₂ flux measurement in a packed-off borehole. Evolution of CO₂ concentration (**a**) and $\delta^{13}\text{C}$ value (**b**) measured by the CCIA DLT-100 after initial flush with CO₂-free air. *Dotted black line* (**a**) is the temperature in the cell, which has here only small amplitude variations. The $\delta^{13}\text{C}$ values in *grey* are raw data and in *black* are after correction for concentration dependence. The *star* is the mean $\delta^{13}\text{C}$ value of two discrete samples analysed by CF-IRMS



is of concern for environmental monitoring, where air temperature may easily vary by 20 °C between night and daytime. At present, the only method we have to reduce these artefacts is to limit environmental temperature variations as much as possible where the analyser is operating. Los Gatos Research now provides an enhanced version of this analyser, with better thermal insulation and stabilization of the cell temperature [23].

As seen before, it is possible to correct for concentration dependence, by using the fitting curve (Fig. 3(b)). For long-term continuous monitoring, it is necessary to determine this curve frequently. The temporal drift of this curve has not been studied, yet. As we are not currently able to dilute progressively and automatically a reference gas, monitoring cannot run unattended for more than one week.

In order to correct for all of these dependences, the following procedure was adopted:

1. All measurements are normalized to a reference cell temperature using the temperature dependence factors determined above. This reference temperature is chosen as the mean temperature during the measurement of both samples and references.
2. $\delta^{13}\text{C}$ values of all measurements are then corrected for concentration dependence with one single fitted curve (determined at the beginning of the measurement campaign).
3. Measured $\delta^{13}\text{C}$ values of two reference gases, corrected for temperature and concentration effects, are reported versus the reference $\delta^{13}\text{C}$ values in order to define the linear calibration curve (Fig. 5). This isotopic calibration reports $\delta^{13}\text{C}$ values in the international VPDB scale.

The corrections needed to improve the analyser accuracy require regular external calibration. Three reference gases must be measured regularly, the first two for the calibration and the third as a quality check to estimate the overall accuracy of the calibration process. We recommend that the concentrations of the chosen reference gases bracket the working range. For our applications, we chose concentrations of 500, 900 and 2000 ppm (cylinders A, C and D). The calibration time interval is chosen as a trade-off between gas consumption and accuracy. A survey of methodologies for two other commercial CCIAAs deployed for long-term continuous monitoring reveals contrasting situations: either the CCIA has an intrinsic high stability so that there is almost no need for calibration (Friedrichs et al. [24] for atmospheric and water-equilibrated CO_2 monitoring with a Picarro analyser), or a regular calibration is realized with four reference gases analysed for 60 s every 10 min, to ensure high accuracy (Schaeffer et al. [21] with a Campbell Scientific analyser for atmospheric CO_2 monitoring). In the latter case, consumption of reference gases is high. In these two cases, no correction for temperature or CO_2 concentration dependence is explicitly taken into account. In our set-up, we measure each reference cylinder for 5 min every 3 hours. With a sample flow rate of around 0.6 L/min, the total consumption is 24 L per day. At this consumption rate a typical 200 bar cylinder of 20 L will last 83 days. Larger gas cylinders are too heavy to be handled in our field applications. This means that several reference cylinders must be purchased and fully characterized each year.

4.2 Field application

The CO_2 flux Φ_{CO_2} (in $\text{g m}^{-2} \text{d}^{-1}$) is obtained from the initial linear increase of concentration $d\text{CO}_2/dt$, expressed as fraction per day, and using (1) from Chiadini et al. [25]:

$$\Phi_{\text{CO}_2} = \frac{P_{\text{atm}} M_{\text{CO}_2}}{RT} \frac{V}{S} \frac{d\text{CO}_2}{dt} \quad (1)$$

where P_{atm} is atmospheric pressure (Pa), M_{CO_2} CO_2 molecular mass (44 g mol^{-1}), R the perfect gas constant, T absolute temperature (K), V volume of the packed-off borehole (m^3), S area of rock producing CO_2 behind the packer (m^2). From data presented in Fig. 7 we found a CO_2 flux of $0.11 \text{ g m}^{-2} \text{d}^{-1}$ consistent with previous results from Pili et al. [19]. We measured an isotopic composition of $-23.7 \pm 0.5 \text{ ‰}$ for the CO_2 degassed from the rock. At 7°C the fractionation factor for carbon between CO_2 and HCO_3^- is -9.6 ‰ [26]. Pili et al. [19] measured $\delta^{13}\text{C}$ values of $-10.9 \pm 1.5 \text{ ‰}$ for HCO_3^- in drip water. Therefore, the measured CO_2 may result from degassing of this reservoir, even if other processes such as fractionation may be involved [27].

5 Conclusion

We assessed the analytical performance of the commercial CO_2 Carbon Isotope Analyser DLT-100 from Los Gatos Research. Even if the basic use seems simple, careful review in the laboratory is required to ensure accuracy before any reliable field measurement. Short term Allan precision for 60 s averaging is 5 ppm for CO_2 concentration and 0.05 ‰ for $\delta^{13}\text{C}$ value (for 17800 ppm CO_2 concentration). This parameter largely overestimates the performance of laser-based isotope ratio analysers. Temperature and CO_2 concentration dependences are the main sources of error. It is therefore important to carefully determine them, as they may result in shifts of the measured values by several per mill. An appropriate environmental setting for the instrument is required for reliable measurements. In particular we suggest running the analyser in an air-conditioned room, and carefully drying the sample before measurement. Several reference gases must be analysed every few hours. Finally, time consuming data processing must not be underestimated. In the 300–2000 ppm range, the achieved accuracy of 1.3 ‰ for $\delta^{13}\text{C}$ is acceptable considering the large variations of carbon isotopic compositions in geological media. The accuracy of this laser-based isotope analyser is still poor compared to mass spectrometry.

Using the CCIA to measure CO_2 flux and the isotopic composition of the source gas is very promising, in boreholes, but also for soil respiration. Simple and fast measurements allow studying of the spatial and temporal variability of both fluxes and sources. Until now, monitoring of CO_2 isotopic composition in underground cavities required frequent visits for sampling, with poor spatial and temporal resolution [2] and constant risk of human breath contamination. The CCIA DLT-100 and Multi Inlet Unit allow long-term continuous measurement of multiple reservoirs (e.g. atmosphere, tunnel, borehole, etc.), and will certainly help to investigate CO_2 sources and migration in geological media,

providing the analyser is regularly calibrated and data are carefully corrected for drifts and dependences.

IRMS measurements remain compulsory to determine the $\delta^{13}\text{C}$ values of reference gases, as often as new reference cylinders have to be used. They are also recommended during field measurement to punctually verify its accuracy.

Acknowledgements The expertise of Carine Chaduteau was invaluable during IRMS measurements. We thank Doug Baer, Feng Dong and other people at Los Gatos Research for their availability, advice and help in using this analyser in specific conditions. Martina Schmidt, Marc Delmotte and Michel Ramonet from LSCE (France) introduced us to the WMO scale and performed the precise CO₂ concentration measurements of the reference cylinders. Didier Mondelain introduced us to laser-based isotope measurement and the Allan variance. Comments and language corrections from Chris Parson have been greatly appreciated. We thank the editors and an anonymous reviewer for their suggestions and comments. This is IPGP contribution number 3251.

References

1. L. Wingate, J. Ogee, R. Burlett, A. Bosc, *Glob. Change Biol.* **16**, 3048 (2010)
2. S. Frisia, I.J. Fairchild, J. Fohlmeister, R. Miorandi, C. Spotl, A. Borsato, *Geochim. Cosmochim. Acta* **75**, 380 (2011)
3. S. Assonov, P. Taylor, C.A.M. Brenninkmeijer, *Rapid Commun. Mass Spectrom.* **23**, 1347 (2009)
4. K.P. Tu, P.D. Brooks, T.E. Dawson, *Rapid Commun. Mass Spectrom.* **15**, 952 (2001)
5. A. Castrillo, G. Casa, M. van Burgel, D. Tedesco, L. Gianfrani, *Opt. Express* **12**, 6515 (2004)
6. L. Croize, D. Mondelain, C. Camy-Peyret, M. Delmotte, M. Schmidt, *Rev. Sci. Instrum.* **79**, 043101 (2008)
7. B. Tuzson, J. Mohn, M.J. Zeeman, R.A. Werner, W. Eugster, M.S. Zahniser, D.D. Nelson, J.B. McManus, L. Emmenegger, *Appl. Phys. B, Lasers Opt.* **92**, 451 (2008)
8. D.R. Bowling, S.D. Sargent, B.D. Tanner, J.R. Ehleringer, *Agric. For. Meteorol.* **118**, 1 (2003)
9. S. Krevor, J.C. Perrin, A. Esposito, C. Rella, S. Benson, *Int. J. Greenh. Gas Control* **4**, 811 (2010)
10. I. McAlexander, G.H. Rau, J. Liem, T. Owano, R. Fellers, D. Baer, M. Gupta, *Anal. Chem.* **83**, 6223 (2011)
11. R. Amundson, L. Stern, T. Baisden, Y. Wang, *Geoderma* **82**, 83 (1998)
12. G. Chiodini, S. Caliro, C. Cardellini, R. Avino, D. Granieri, A. Schmidt, *Earth Planet. Sci. Lett.* **274**, 372 (2008)
13. D.S. Baer, J.B. Paul, M. Gupta, A. O'Keefe, *Proc. SPIE Int. Soc. Opt. Eng.* **4817**, 167 (2002)
14. L. Gianfrani, M. Gabrysch, C. Corsi, P. DeNatale, *Appl. Opt.* **36**, 9481 (1997)
15. C.L. Zhao, P.P. Tans, *J. Geophys. Res., Atmos.* **111**, D08S09 (2006)
16. P. Werle, R. Mucke, F. Slemr, *Appl. Phys. B* **57**, 131 (1993)
17. P. Werle, *Appl. Phys. B, Lasers Opt.* **102**, 313 (2011)
18. A.-S. Provost, P. Richon, E. Pili, F. Perrier, S. Bureau, *Eos* **85**, 113 (2004)
19. E. Pili, M. Dellinger, L. Charlet, P. Agrinier, F. Chabaux, P. Richon, *Geochim. Cosmochim. Acta* **73**, A1029 (2009)
20. P. Sturm, A. Knohl, *Atmos. Meas. Tech.* **3**, 67 (2010)
21. S.M. Schaeffer, J.B. Miller, B.H. Vaughn, J.W.C. White, D.R. Bowling, *Atmos. Chem. Phys.* **8**, 5263 (2008)
22. D. Paul, G. Skrzypek, I. Forizs, *Rapid Commun. Mass Spectrom.* **21**, 3006 (2007)
23. D.S. Baer, personal communication (2011)
24. G. Friedrichs, J. Bock, F. Temps, P. Fietzek, A. Kortzinger, D.W.R. Wallace, *Limnol. Oceanogr., Methods* **8**, 539 (2010)
25. G. Chiodini, R. Cioni, M. Guidi, B. Raco, L. Marini, *Appl. Geochem.* **13**, 543 (1998)
26. P. Deines, D. Langmuir, R.S. Harmon, *Geochim. Cosmochim. Acta* **38**, 1147 (1974)
27. D. Scholz, C. Muhlinghaus, A. Mangini, *Geochim. Cosmochim. Acta* **73**, 2592 (2009)

En 2011, une deuxième version de l'analyseur laser des isotopes du CO_2 a été acquise, le CCIA-EP (CO_2 Carbon Isotope Analyzer-Enhanced Performance, Los Gatos Research). La caractérisation des performances présentée dans l'article ci-dessus a été reprise dans le cadre d'un stage de DUT (Benjamin Richard) que j'ai encadré, afin de caractériser cette deuxième version de l'analyseur isotopique du CO_2 . Cette nouvelle version (CCIA-EP) présente de meilleures performances que la précédente (DLT-100), en particulier une meilleure stabilité thermique et une dépendance moins importante de la composition isotopique à la concentration.

3.5.2 Utilisation de la spectroscopie d'absorption laser (IRIS) pour la mesure de la composition isotopique du CO_2 au Laboratoire Naturel de Roselend

Différentes campagnes de mesures ont été réalisées au Laboratoire Naturel de Roselend avec deux analyseurs isotopique du CO_2 . Malgré l'importante caractérisation réalisée au laboratoire (Guillon *et al.*, 2012), les méthodologies pour la mesure sur le terrain et pour des gammes de concentrations de CO_2 très variables restent à préciser. Les mesures par spectroscopie d'absorption laser doivent être corrigées pour tenir compte de la dérive de l'instrument et des effets de non-linéarité. Pour garantir la justesse des résultats, il est encore nécessaire de dupliquer certaines mesures par spectrométrie de masse, qui reste pour le moment la méthode de référence.

Un suivi continu pendant plusieurs mois a été réalisé avec l'analyseur CCIA-EP dans le tunnel et la inner room avec la porte fermée et calfeutrée. Les premières séries temporelles continues de la composition isotopique du CO_2 dans le tunnel lors d'une anomalie en gaz sont présentées ci-après.

En surface, le suivi de la composition isotopique du CO_2 avec l'analyseur DLT-100, dans l'atmosphère et dans le forage SCH1, n'a pas été concluant pour le moment. Dans le forage SCH1, la concentration en CO_2 est de l'ordre de 10 000 à 30 000 ppm, ce qui est largement en dehors de la gamme de concentration restreinte (typiquement entre 300 et 500 ppm) pour laquelle les instruments dont nous disposons ont été conçus. Quelques échantillons ont été prélevés dans le forage SCH1 et analysés par spectrométrie de masse au laboratoire. Ils montrent une variabilité importante de la composition isotopique du carbone du CO_2 , entre -20 et -34 ‰ V-PDB.

Pour finir, l'analyseur CCIA-EP a été utilisé lors de la validation du protocole d'injection de gaz traceurs dans la chambre, en utilisant du CO_2 marqué isotopiquement ($^{13}CO_2$) comme analogue de l'hélium-3.

3.5.2.1 Identification des sources de CO_2 dans le tunnel et de leur évolution temporelle

En avril 2013, l'analyseur CCIA-EP a été installé dans le tunnel pour mesurer la concentration en CO_2 et le $\delta^{13}C_{CO_2}$ dans l'air du tunnel et dans l'air de la inner room, dont la porte a été fermée et calfeutrée. Comme l'a montré l'étude de la dynamique naturelle des gaz, il est important d'analyser les gaz à la fois dans le tunnel et dans un volume isolé, tel que la chambre C ou la inner room calfeutrée. Dans un volume isolé,

l'absence de ventilation permet de s'approcher de la composition des gaz de la porosité. De plus, la composition du CO_2 dans ce volume n'est pas altérée par le CO_2 produit par la respiration humaine, lors des visites dans le tunnel. Enfin, alors que les forages offrent aussi ces deux avantages, le volume de la chambre C et de la inner room sont grands, ce qui permet d'y prélever les quantités d'air nécessaires à l'analyse en continu. Le débit d'air prélevé par le CCIA-EP est en effet de 1 L/min. Le choix de la inner room à la place de la chambre C s'est imposé car la chambre C contenait des concentrations élevées en traceurs suite au traçage réalisé en octobre 2012, et nous souhaitons la conserver isolée. Pour tenter de s'approcher au mieux des conditions d'isolement de la chambre C, la porte qui équipe la inner room a été fermée, et les interstices autour de la porte ont été colmatés à l'aide de joints de mousses pour l'isolation. L'étanchéité obtenue est suffisante pour réduire la ventilation naturelle de la inner room et la contamination par le CO_2 issu de la respiration humaine dans le tunnel. L'air de la inner room est prélevé et acheminé jusqu'à l'analyseur grâce à un tube en polyéthylène (Bev-a-line, Cole-Parmer) de 10 m de long.

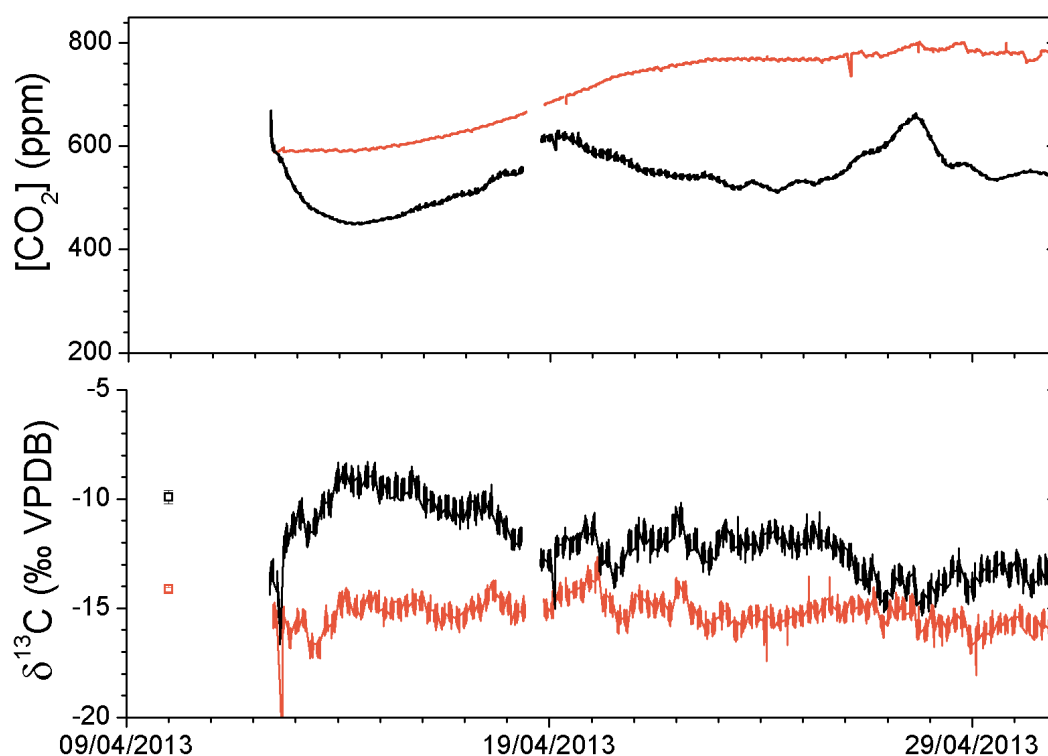


FIGURE 3.12 – Concentration en CO_2 (en haut) et composition isotopique $\delta^{13}C_{CO_2}$ (en bas) mesurées par l'analyseur CCIA-EP dans l'air du tunnel (noir) et de la inner room (orange). Les carrés indiquent les valeurs de $\delta^{13}C_{CO_2}$ mesurées par spectrométrie de masse sur des échantillons.

FIGURE 3.12 – CO_2 concentration (top) and carbon isotope composition $\delta^{13}C_{CO_2}$ (bottom) measured by the CCIA-EP analyzer in the tunnel (black) and the inner room (orange). The squares indicate $\delta^{13}C_{CO_2}$ values measured by isotope ratio mass spectrometry on discrete samples.

Le CCIA-EP analysait successivement l'air du tunnel pendant 4 h, l'air de la inner room pendant 4 h, puis 3 gaz de référence (bouteilles B20 à 200 bar, Air Products)

de concentrations en CO_2 2002 ppm, 899 ppm et 392 ppm dans une matrice 78 % N_2 , 21 % O_2 et 1 % Ar, pendant 5 min chacun. Un dispositif de membranes sèches, présenté plus haut, assurait la stabilité de la concentration en vapeur d'eau de tous les gaz analysés autour de 1 000 ppm. Les valeurs de $\delta^{13}C_{CO_2}$ des 3 gaz de référence ont été déterminées par spectrométrie de masse à l'IPG Paris avec une précision inférieure à 0,5 ‰. Les concentrations en CO_2 des gaz de référence sont certifiées par le fournisseur (Air Products) avec une précision de 0,5 ‰. Les concentrations en CO_2 des gaz de référence ont été choisies pour encadrer la gamme de variation attendue dans le tunnel et la inner room. L'intervalle de calibration de 8 h a été choisi pour pouvoir corriger les mesures de la dérive temporelle de l'analyseur. Les mesures sont effectuées à la fréquence de 1 Hz, puis moyennées sur 60 secondes.

La méthode présentée dans Guillon *et al.* (2012) (Section 3.5.1) a été reprise et modifiée pour corriger les données brutes. Il n'a pas été ici nécessaire de corriger de la dépendance à la température. L'analyseur CCIA-EP présente en effet une meilleure isolation thermique que l'analyseur DLT-100 (utilisé dans Guillon *et al.* (2012)) et la température dans la tunnel est très stable, à $7,4 \pm 2^\circ C$.

Des corrections sont appliquées aux données brutes de concentration et de $\delta^{13}C$ en utilisant les mesures régulières des 3 gaz de référence et en faisant l'hypothèse d'une dérive linéaire de l'analyseur entre deux mesures successives des gaz de référence. Les concentrations en CO_2 des gaz analysés sont restées comprises entre 400 et 800 ppm. Dans cette gamme de variation restreinte, les erreurs de non-linéarité (effet de la concentration en CO_2 sur la mesure du $\delta^{13}C$) sont restées limitées.

Les résultats obtenus après traitement des données brutes sont présentés en Figure 3.12, pour la période du 12 au 31 avril 2013. Des échantillons d'air du tunnel et de la inner room ont été prélevés quelques jours avant le début de la série de données. Afin de valider les résultats obtenus par IRIS, ces échantillons ont été analysés par Isotope Ratio Mass Spectrometry (IRMS), la méthode de référence, à l'IPG Paris. Les valeurs de $\delta^{13}C_{CO_2}$ sont cohérentes avec celles obtenues par IRIS après traitement des données brutes.

La période de mesure couvre celle d'une anomalie en gaz dans le tunnel, qui a été étudiée en détails dans la Section 3.3.3 (Figures 3.8 et 3.9). La concentration en CO_2 mesurée dans le tunnel par IRIS à la cote 55 m (Figure 3.12) peut être comparée à celle mesurée simultanément par un analyseur photo-acoustique à la cote 107 m (Figure 3.9). Les deux mesures montrent des augmentations simultanées de la concentration en CO_2 , qui définissent le régime d'anomalie. La concentration en CO_2 atteint 750 ppm à la cote 107 m, alors qu'elle n'atteint que 700 ppm à la cote 55 m. Un tel gradient de concentration vers le fond du tunnel est expliqué par le fait que la ventilation y est moins importante qu'à l'entrée (Richon *et al.*, 2005). Dans la inner room, l'évolution de la concentration en CO_2 est différente, avec une augmentation régulière et des valeurs plus élevées, jusqu'à 800 ppm (Figure 3.12). Cette différence résulte de l'absence de ventilation dans la inner room.

La composition isotopique du carbone du CO_2 mesurée dans la inner room est globalement stable à $-15,2 \pm 0,7$ ‰ V-PDB pendant toute la période de mesure (Figure 3.12). Lors d'une anomalie, il n'y a donc pas de modification de la source du CO_2 , qui est seulement transporté en plus grandes quantités.

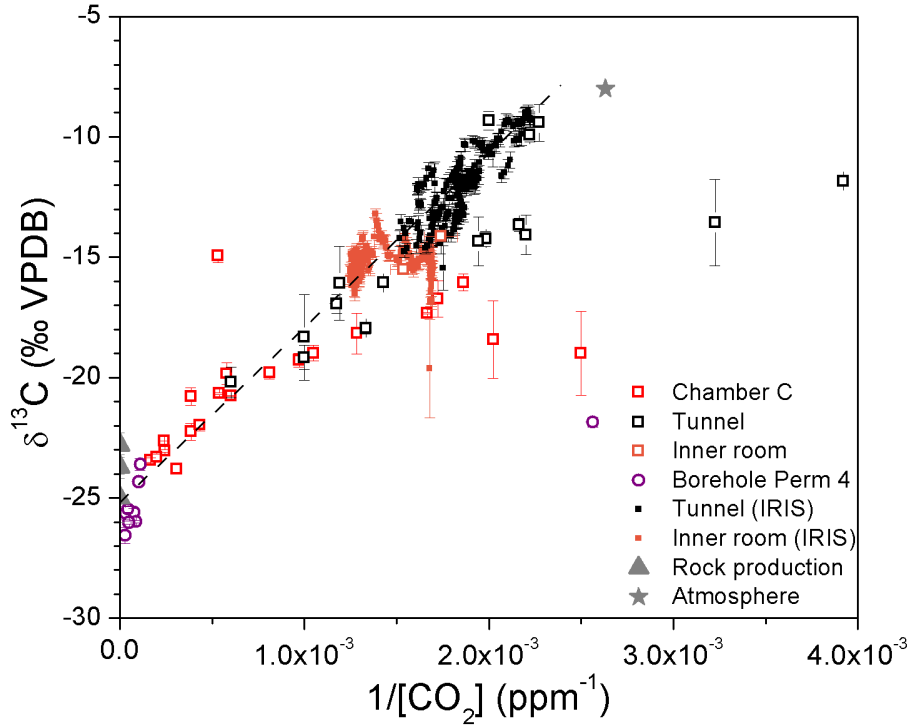


FIGURE 3.13 – Composition isotopique du carbone du CO_2 en fonction de l'inverse de la concentration en CO_2 (Keeling plot), mesurée par spectrométrie de masse (IRMS) au laboratoire sur des échantillons (symboles vides) et par spectroscopie laser (IRIS) sur le terrain (symboles pleins). Les mesures par IRIS dans le tunnel sont alignées sur une droite de mélange, entre le CO_2 atmosphérique (étoile grise, $\delta^{13}C = -8$ ‰) et le CO_2 produit par la roche (triangles gris, $\delta^{13}C = -25,6 \pm 1,0$ ‰).

FIGURE 3.13 – CO_2 carbon isotope composition versus the inverse of CO_2 concentration, measured in discrete samples by mass spectrometry (IRMS) in the laboratory (empty symbols) and by laser spectroscopy (IRIS) in the field (full symbols). Data obtained by IRIS in the tunnel are aligned on a mixing line between atmospheric CO_2 (grey star, $\delta^{13}C = -8$ ‰) and CO_2 produced by the rock (grey triangles, $\delta^{13}C = -25.6 \pm 1.0$ ‰).

La méthode du Keeling plot est utilisée pour déterminer la valeur du $\delta^{13}C_{CO_2}$ de la source de CO_2 , dans l'hypothèse d'un mélange binaire entre le CO_2 atmosphérique et le CO_2 issu de la roche. Elle a déjà été utilisée pour obtenir la composition isotopique du carbone du CO_2 produit par la roche : $-23,7 \pm 0,5$ ‰ à partir du forage Perm 4 (Guillon *et al.*, 2012, voir Section 3.5.1) et $-22,8 \pm 0,5$ ‰ à partir de la chambre C (voir Section 3.3.1). Ces deux déterminations sont représentées dans la Figure 3.13.

Sur la Figure 3.13, les données obtenues par IRIS dans le tunnel et la inner room sont comparées aux mesures obtenues par spectrométrie de masse sur des échantillons prélevés dans le tunnel, la chambre et le forage Perm 4, et utilisées pour obtenir les deux valeurs précédentes. L'ensemble des données obtenues dans le tunnel par IRIS est compatible avec un processus de mélange décrit par une droite. La composition isotopique du carbone du CO_2 produit par la roche est donnée par l'intersection de cette droite avec l'axe des ordonnées, et vaut $\delta^{13}C = -25,6 \pm 1,0$ ‰. L'incertitude sur la valeur obtenue à partir de mesures dans le tunnel est importante, car la gamme de variation de la concentration en CO_2 mesurée dans le tunnel est trop faible pour pouvoir

déterminer précisément la droite de mélange et la valeur de l'ordonnée à l'origine.

Trois valeurs ont ainsi été obtenues pour la composition isotopique du carbone du CO_2 produit par la roche, qui couvrent une gamme de plus de 4 ‰ (Figure 3.13, triangles gris). Si l'on exclut des erreurs expérimentales, cette dispersion pourrait être due à la variabilité naturelle de la source de CO_2 .

3.5.2.2 Validation du protocole d'injection des traceurs dans la chambre C

L'utilisation d'un outil de mesure à haute fréquence (1 Hz) des isotopes du CO_2 a permis de valider le protocole d'injection des gaz traceurs dans la chambre C.

En octobre 2013, nous avons réalisé une expérience de traçage avec de l'hélium-3, entre la chambre C et la sub-surface. L'hélium-3 est un traceur rare et onéreux. La quantité disponible était réduite (2 L), mais devait être suffisante pour permettre une détection en surface en raison du fond géochimique extrêmement faible de cet isotope. Nous souhaitions toutefois éviter au maximum tout gaspillage du traceur.

Préalablement à ce traçage, le protocole d'injection a été testé et validé pour vérifier l'absence de fuites sur la ligne d'injection, et pour s'assurer que la quantité de traceur extraite de la bouteille est maximale. Pour valider le protocole d'injection du traceur, l'expérience a été simulée en utilisant le $^{13}CO_2$ comme mimétique du traceur réel, l'hélium-3.

Le $^{13}CO_2$ a été choisi car il est présent en très faible quantité dans l'atmosphère et peut se détecter à très bas niveau. C'est un gaz relativement peu onéreux, et qu'on a pu obtenir dans le même conditionnement que l'hélium-3. La simulation de l'injection a été réalisée avec 2 litres de $^{13}CO_2$ enrichi à 99,7 % (Euriso-top), conditionné dans une bouteille B04 à 5 bar. L'injection de CO_2 depuis la bouteille a été réalisée selon le même protocole que pour l'hélium-3, présenté au Chapitre 4. Au lieu d'être injecté dans la chambre C, le $^{13}CO_2$ a été aspiré dans une gaine de ventilation pour l'évacuer hors du tunnel. Nous ne souhaitions en effet pas introduire de CO_2 d'origine anthropique et avec une composition isotopique très différente de celles du CO_2 naturel, afin de ne pas perturber les suivis réalisés. Lors de la simulation d'injection, la succession de remplissages-détentes-tirages au vide de la bouteille a par ailleurs été limitée à 3, au lieu de 5 pour l'hélium-3.

Pendant toute la durée de la simulation d'injection, l'analyseur IRIS de CO_2 , CCIA-EP, analysait l'air du tunnel en temps réel. Une prise d'air au plus près des circuits d'injection a permis de les tester au mieux. Aucune fuite de traceur n'a été mise en évidence lors de l'injection.

La teneur et la composition isotopique du CO_2 résiduel dans la bouteille après la simulation d'injection ont été mesurées par l'analyseur CCIA-EP (sur le terrain) et par spectrométrie de masse à l'IPG Paris, pour déterminer la quantité de traceur $^{13}CO_2$ non injectée. Le taux de récupération, défini comme la proportion de la quantité initiale de gaz ayant été évacuée de la bouteille, a été évalué à 99,96 %. Ce taux de récupération a encore été amélioré lors de la véritable injection d'hélium-3 en effectuant 5 successions de remplissage-détente-tirage au vide au lieu de 3 (cf Chapitre 4).

3.6 Conclusion

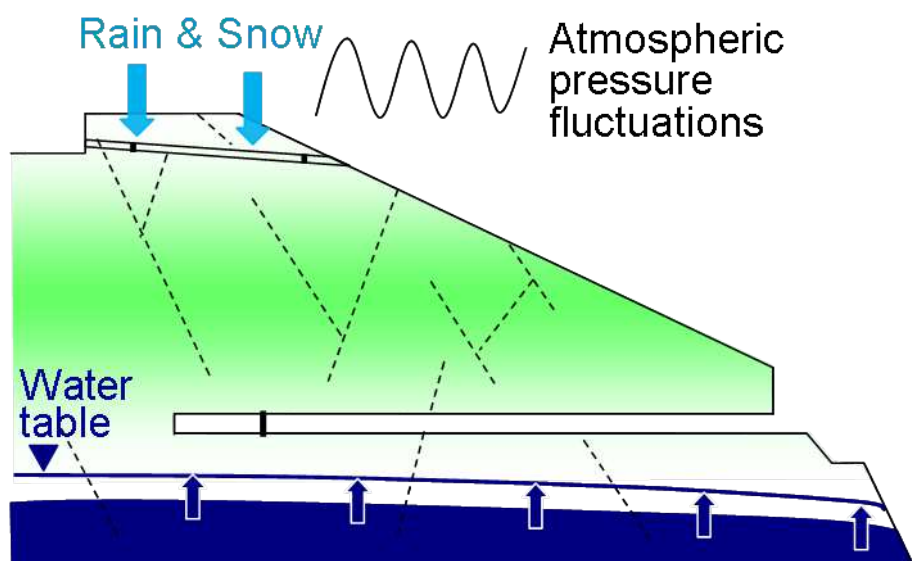


FIGURE 3.14 – Schéma récapitulatif des processus qui contrôlent la dynamique naturelle des gaz en zone non saturée. Les baisses de la pression atmosphérique créent des flux de gaz hors de la roche, auxquels s'ajoutent ceux créés par les flux d'eau descendants et ascendants.

FIGURE 3.14 – Summary of the mechanisms controlling the natural dynamics of gases in the unaturated zone. Barometric lows create gas fluxes out of the rock. Additionnal fluxes are due to upward and downward water movements.

Les suivis simultanés du CO_2 , du ^{222}Rn et du SF_6 dans la chambre et le tunnel à 55 m de profondeur, dans le sol et les forages SC en surface, ont permis d'identifier les processus qui contrôlent la dynamique naturelle des gaz en zone non saturée (Figure 3.14). Un tel suivi combiné de différents gaz, traceurs introduits ou naturellement présents, issus de différents compartiments de la géosphère, constitue un apport important à la compréhension de la dynamique des gaz. Les fluctuations des concentrations observées sont causées par les fluctuations de la pression atmosphérique et par les mouvements d'eau ascendants et descendants. Les effets des mouvements d'eau sont dominants en surface. En profondeur, ils sont également parfois visibles, mais l'effet dominant est celui des variations de pression atmosphérique. La compréhension de ces dynamiques complexes demande des efforts importants, à la fois pour l'instrumentation et pour la modélisation.

Les trois types de structures utilisées pour le suivi des gaz, le tunnel, la chambre et les forages, sont complémentaires et nécessaires pour comprendre la dynamique de la zone non saturée. D'une part, la chambre isolée et les forages obturés constituent des "pores géants", et donnent les mesures les plus représentatives du fonctionnement naturel, non perturbé, de la zone non saturée. La chambre est caractérisée par un volume important. Elle recoupe de nombreuses fractures dont certaines peuvent être très perméables (cf. Chapitre 4), en intégrant l'hétérogénéité caractéristique du milieu à l'échelle du mètre. La chambre constitue donc une moyenne, représentative du milieu à l'échelle de la dizaine de mètres. Le volume de la chambre permet par ailleurs d'y prélever les quantités

d'air nécessaires pour une analyse déportée des gaz. En revanche, pour étudier individuellement les composantes du système, la matrice et les fractures, les forages sont plus adaptés. De plus petites dimensions, il peuvent ne recouper aucune fracture, ou bien n'en recouper qu'un petit nombre. Leur plus faible volume limite cependant les mesures de gaz qu'il est possible d'y réaliser. D'autre part, le tunnel est directement relié avec l'atmosphère. La différence de pression existant dans la chambre et les forages y est absente, tout comme les mouvements de gaz qui en résultent. Les visites dans le tunnel créent par ailleurs des perturbations des concentrations en gaz et de la température qui empêchent le suivi de ces paramètres pendant plusieurs jours. Cependant, en raison de la ventilation du tunnel par l'air extérieur, la ligne de base des gaz y est faible, et les variations des concentrations y sont plus facilement détectables que dans la chambre ou les forages, où la ligne de base est plus élevée.

Les résultats obtenus concernant la dynamique naturelle des gaz en zone non saturée s'étendent à la détection en surface de gaz venant de la profondeur. Différentes structures et analyseurs peuvent être utilisés pour prélever et analyser les gaz en sub-surface. Les forages, de 2 à 10 m de profondeur, nous semblent être les structures ayant la plus forte probabilité de mesurer les gaz d'origine profonde, d'autant plus qu'ils recoupent des fractures. L'analyse des gaz en forages présente cependant certaines limites, liées à l'hétérogénéité spatiale forte des milieux fracturés. Selon les conditions hydrogéologiques, l'analyse peut être rendue impossible par des flux d'eau importants. La perméabilité du milieu doit également être connue pour déterminer le débit de prélèvement des gaz et éviter la contamination par l'air atmosphérique ou la mise en dépression des forages.

Un instrument a été développé récemment par Carrigan *et al.* (2013) pour améliorer les conditions de détection de l'arrivée de traceurs en surface. Le fonctionnement de cet instrument est basé sur le contrôle par les variations de la fluctuations atmosphérique des flux des gaz, d'origine naturelle ou artificielle. En effet, on a vu que les flux de gaz depuis la roche vers le tunnel sont les plus importants lors des épisodes de dépression atmosphérique. Les flux des gaz traceurs et des gaz naturellement présents, comme le radon, sont contrôlés par les mêmes processus, et montrent des augmentations simultanées. Les prélèvements d'air par l'instrument sont ainsi déclenchés par les baisses importantes de la pression atmosphérique et/ou par les augmentations de l'activité en radon. Dans le cadre de la détection des essais nucléaires souterrains, les traceurs d'intérêt qui sont mesurés en sub-surface sont les radionucléides (Carrigan et Sun, 2012) et l'argon-37 (Riedmann et Purtschert, 2011).

Plus généralement, la détection d'une arrivée de gaz traceur est définie comme une augmentation par rapport au fond géochimique naturel de ce gaz. Il est donc nécessaire de connaître la gamme de variation du fond géochimique naturel. Les résultats obtenus au Laboratoire Naturel de Roselend montrent en effet des variations importantes des concentrations en gaz en sub-surface, en réponse à divers moteurs (météorologique, hydrologique, biologique). Il en est de même dans toutes les zones non saturées (Perrier *et al.*, 2004; Batiot-Guilhe *et al.*, 2007; Kowalczyk et Froelich, 2010; Johnson *et al.*, 2009). Si la ligne de base n'est pas suffisamment connue, une augmentation d'origine naturelle risque d'être à tort considérée comme une arrivée du traceur.

Dans ce chapitre, la détection en surface d'un gaz venant de la profondeur a été étudiée. La dynamique étudiée a une portée plus large. Elle montre des flux de gaz importants à l'interface géosphère-atmosphère, qui ont des conséquences sur l'enregis-

trement des paléoclimats dans les spéléothèmes (Baldini *et al.*, 2006; Lambert et Aharon, 2011; Riechelmann *et al.*, 2011; Scheidegger *et al.*, 2011) ou la datation des eaux souterraines (Darling *et al.*, 2012; Jaunat *et al.*, 2012). La zone non saturée agit comme un filtre entre l'atmosphère et la géosphère, et définit la fonction de transfert entre les deux. Pour pouvoir tirer des conclusions pertinentes sur l'enregistrement des paléoclimats dans les spéléothèmes (Verheyden *et al.*, 2008) ou dans les gaz rares dissous dans les aquifères (Klump *et al.*, 2008), il faut donc comprendre cette fonction de transfert.

Chapitre 4

Migration des gaz : expériences de traçage au Laboratoire Naturel de Roselend

La compréhension des mécanismes de transport des gaz depuis leur production en profondeur, en particulier suite à une explosion nucléaire souterraine, jusqu'à la surface, passe par la réalisation d'expériences de traçages.

Comme l'a souligné l'étude bibliographie présentée en Section 1.2, l'utilisation de plusieurs traceurs facilite et enrichit l'interprétation des résultats : l'injection simultanée d'un mélange de plusieurs traceurs aux propriétés différentes permet de mettre en évidence un mécanisme faisant intervenir ces propriétés. Les injections successives de traceurs permettent de distinguer les effets des conditions aux limites qui évoluent dans le temps.

Plusieurs traçages successifs ont été réalisés pour ce travail, en augmentant graduellement la complexité du système étudié. Dans un premier temps, des traçages ont été réalisés à une échelle métrique entre les forages Perm de la paroi de la chambre. Les protocoles expérimentaux et analytiques ont ainsi été validés, pour être appliqués dans un second temps à des traçages à l'échelle de 55 m, entre la chambre et la carrière. Une première injection de SF_6 dans la chambre a servi à valider l'existence de connexions entre la chambre et la surface, et à tester les protocoles d'injection et de suivi des traceurs en sub-surface. Une seconde injection d'un mélange de traceurs dans la chambre a ensuite été réalisée avec des paramètres d'injection différents, afin de tester l'influence de la nature du gaz et de la pression d'injection sur la migration, de valider l'emploi des gaz rares et de la mesure isotopique.

4.1 Traçages à l'échelle métrique entre forages du tunnel

Avant de réaliser des traçages entre la chambre et la surface, il importait de valider notre capacité à réaliser une injection de gaz traceur contrôlée dans un volume fermé et à mesurer l'arrivée du traceur dans un forage. Pendant mon Master 2 (Guillon, 2010),

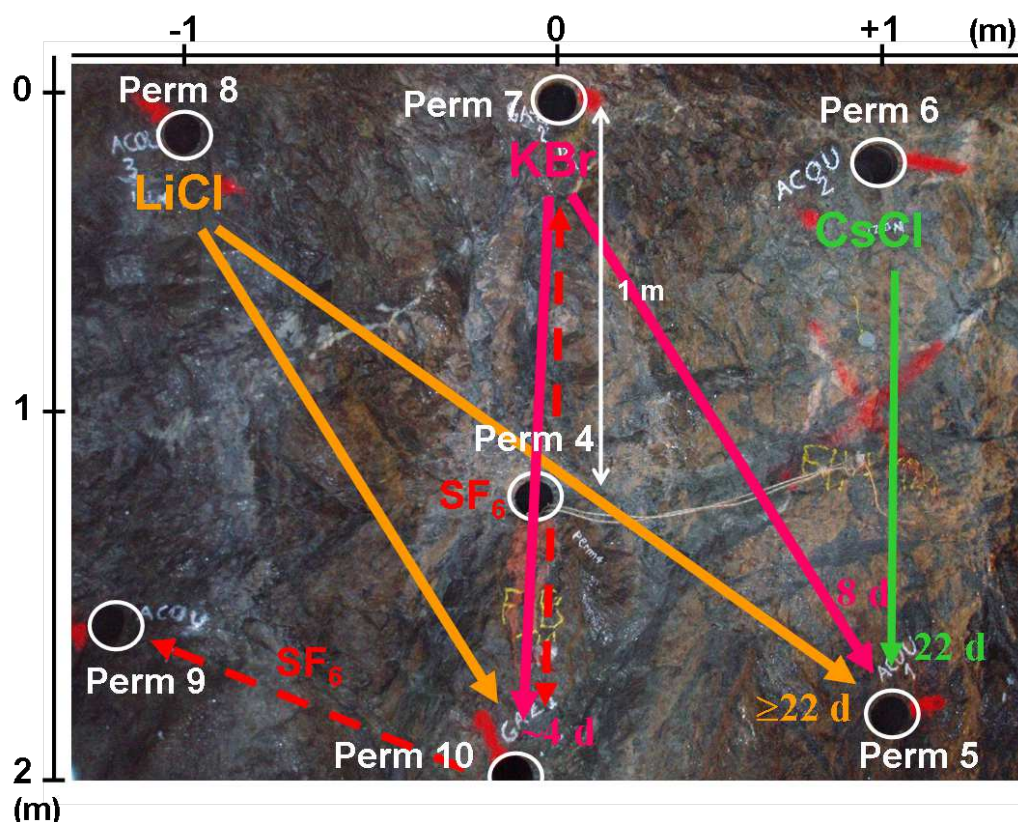


FIGURE 4.1 – Les sept forages sub-horizontaux Perm 4 à 10, dans la paroi Nord de la chambre entre les cotes 120 et 122 m. Les traceurs salins injectés dans les différents forages et les connexions déduites des courbes de percée sont indiqués par des flèches. Les flèches tiretées indiquent les connexions déduites des injections de gaz SF_6 (Guillon, 2010).

FIGURE 4.1 – The seven sub-horizontal boreholes Perm 4 to 10, in the North wall of the chamber. The ionic tracers injected in the upper boreholes and the connections deduced from the breakthrough curves are indicated by arrows. Dashed arrows indicate connections deduced from SF_6 gas tracing experiments (Guillon, 2010).

j'ai réalisé une première expérience de traçage avec du SF_6 , en utilisant les forages sub-horizontaux Perm 4 à 10, distribués selon une rosace dans la paroi du tunnel (Figure 4.1). Cette expérience a été réalisée à l'échelle métrique, plus facile à aborder expérimentalement que l'échelle de 55 m (quantités de gaz mises en jeu plus faibles, processus plus rapides). À l'issue de cette expérience, la mesure du gaz traceur SF_6 dans des forages était maîtrisée.

L'expérience de traçage gazeux à l'échelle métrique a fait apparaître l'hétérogénéité du milieu. La migration des gaz est contrôlée par les fractures, et les chemins de migration ne peuvent pas être déterminés *a priori*. Les deux injections de SF_6 réalisées dans les forages Perm 10 et Perm 4 n'avaient permis d'identifier que peu de connexions entre forages (Guillon, 2010). Une autre série de traçages a donc été réalisée à l'échelle métrique, pour améliorer la compréhension des connexions entre les forages Perm et de l'hétérogénéité de la fracturation.

Afin d'étudier le rôle de l'hétérogénéité de la teneur en eau sur la migration des

gaz (Guillon, 2010), nous avons choisi de réaliser ces traçages métriques en conditions saturées, avec une injection d'eau contenant des solutés. Les sels ioniques utilisés comme traceurs ont été choisis pour effectuer plusieurs traçages simultanés. Les protocoles expérimentaux utilisés et les résultats obtenus sont présentés dans cette section.

4.1.1 Protocole expérimental

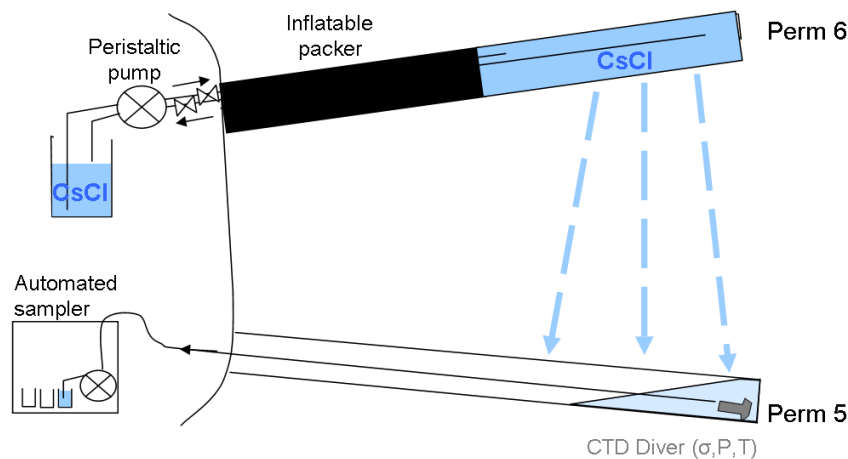


FIGURE 4.2 – Schéma du dispositif d'injection des traceurs aqueux dans les forages Perm 6, Perm 7 et Perm 8. Le même dispositif a d'abord été utilisé avec une eau non marquée pour saturer le massif.

FIGURE 4.2 – Drawing of the injection of aqueous tracers in the upper boreholes Perm 6, Perm 7 and Perm 8. The same protocol was first used with pure water in order to saturate the rock.

Les trois forages supérieurs, Perm 6, 7 et 8, ont été utilisés pour l'injection de trois traceurs salins différents : LiCl, KBr et CsCl (Figure 4.1). Les trois forages inférieurs, Perm 5, 9 et 10 ont été utilisés pour l'observation des courbes de percée. Dans le forage central, Perm 4, très peu perméable (10^{-19} m^2 , Chapitre 2), le débit d'eau est quasiment nul, ce qui n'a pas permis d'y mesurer l'arrivée éventuelle des traceurs. Trois traçages distincts ont ainsi été réalisés simultanément, destinés à identifier les connexions individuelles entre les forages.

Le dispositif d'injection des solutions de traceurs dans les forages supérieurs et de prélèvement d'eau dans les forages inférieurs est décrit dans la Figure 4.2. Dans un premier temps, afin de saturer au maximum la porosité de la roche, les trois forages supérieurs ont été remplis d'eau le 22/11/2010. Comme représenté en Figure 4.2, une pompe péristaltique a permis de faire circuler largement l'eau dans les forages d'injection obturés. Au bout de 43 jours, la saturation en eau de la roche a été supposée atteinte. Des solutions marquées ont été préparées avec des concentrations massiques de 10 g/L, soit des concentrations molaires de 236 mmol/L pour LiCl, 84 mmol/L pour KBr et 59 mmol/L pour CsCl. L'injection des solutions marquées dans les forages supérieurs, préalablement vidés, a été réalisée le 05/01/2011 à 15 : 00 (TU).

Dans les trois forages inférieurs, des capteurs CTD-Diver (Schlumberger Water Service) ont été installés pour mesurer en continu la hauteur d'eau et la conductivité spécifique. Des prélèvements d'eau ont par ailleurs été réalisés toutes les 36 h à l'aide de trois préleveurs automatiques (ISCO 3700). Lors de chaque prélèvement, une pompe péristaltique pompait toute l'eau présente dans le forage d'observation (soit entre 0,1 et 7 L) dans un flacon de 125 mL, et le trop-plein était évacué par débordement. Des prélèvements d'eau ont également été réalisés au niveau de la zone de fracture FZ2, située au toit du tunnel à proximité de la rosace de forages. Un pluviomètre (Précis Mécanique) a permis de collecter l'eau de percolation, et de remplir séquentiellement les flacons de prélèvement de façon gravitaire à l'air d'un préleveur automatique modifié (ISCO 3700) comme dans Pili *et al.* (2008a). Ce suivi du traçage a été conduit pendant 2 mois et demi après l'injection. Certains des prélèvements, dans les forages Perm 9, 10 et 5 et en FZ2, n'ont pas été réalisés à cause de défaillances des batteries et des pompes des préleveurs automatiques. Le 22/03/2011, 77 jours après l'injection, des échantillons d'eau ont été prélevés dans les forages d'injection, pour déterminer les quantités de traceurs restantes.

Les teneurs en anions Br^- , Cl^- , SO_4^{2-} et PO_4^{2-} (resp. cations K^+ , Li^+ , Na^{2+} , Ca^+ et Mg^{2+}) des échantillons d'eau ont été mesurées par électrophorèse capillaire (resp. par spectrométrie d'émission atomique à source plasma ICP-AES) par Martine Lanson et Delphine Tisserand, à ISTERre (Grenoble). Le césium n'a pas été mesuré. L'incertitude des mesures est de 10 %.

4.1.2 Résultats et discussion

Les résultats des mesures de conductivité et de concentrations en ions sont présentées dans les Figures 4.3 et 4.4 respectivement. Sur la Figure 4.3, on observe au bout de 4 jours une augmentation assez progressive de la conductivité dans le forage Perm 10, qui atteint un maximum au bout de 16 jours, pour ensuite ne décroître que lentement. Dans le forage Perm 5, on observe au bout de 8 jours une augmentation rapide et forte de la conductivité. Après avoir atteint son maximum en même temps que dans le forage Perm 10, la conductivité dans le forage Perm 5 diminue rapidement pendant 12 jours, avant de suivre une tendance plus lente, proche de celle observée dans le forage Perm 10. Dans le forage Perm 9, la conductivité reste stable (Figure 4.3), à une valeur égale à celle de l'eau qui s'infiltre depuis la surface, comme mesuré en FZ2.

Sur la Figure 4.4, les mesures des concentrations des différents ions permettent de préciser ces résultats. Dans le forage Perm 10, malgré l'absence d'échantillons et de données dans la première partie de la courbe de percée, on mesure dans la seconde partie la présence d'ions Li^+ , K^+ et Cl^- , indiquant des percées en provenance des forages Perm 8 et Perm 7. En l'absence de mesures de l'ion Cs^+ , il n'est pas possible de conclure sur une éventuelle percée en provenance du forage Perm 6. Dans le forage Perm 5, l'évolution de la conductivité est expliquée par la percée du KBr (données Br^- non présentées). On observe également une percée du Cl^- au bout de 16 jours, et une faible présence de Li^+ dans la dernière partie de la courbe. L'arrivée du Cl^- précède celle du Li^+ (Figure 4.4), ce qui indique une percée en provenance du forage Perm 6, qui précède celle en provenance du forage Perm 8.

Deux mois et demi après l'injection, les mesures de conductivité dans les prélèvements des forages d'injections indiquent qu'il ne reste plus de traceurs dans le forage Perm 7,

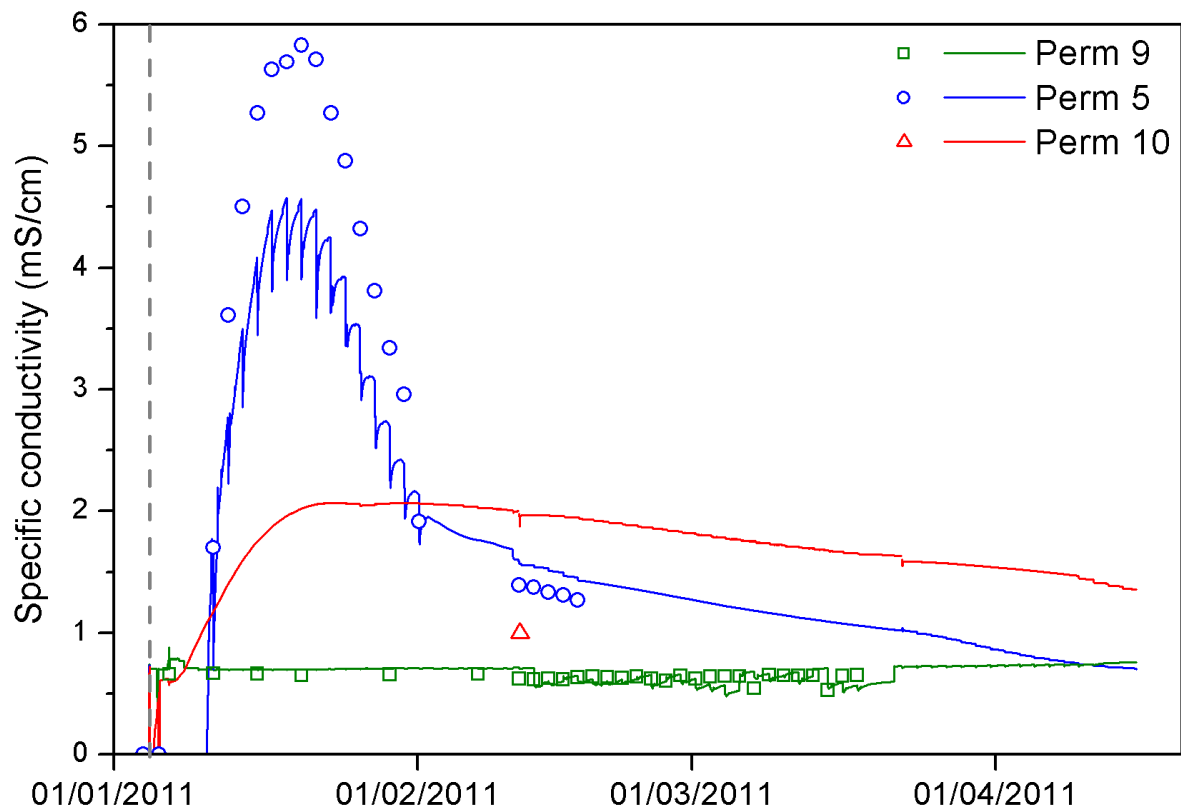


FIGURE 4.3 – Conductivité spécifique mesurée dans les forages Perm 9 (vert), Perm 10 (rouge) et Perm 5 (bleu). Les lignes continues indiquent les mesures de conductivité dans les forages par les sondes CTD-Diver. Les figurés ponctuels indiquent les mesures de conductivité réalisées au laboratoire dans les échantillons d’eau prélevés. L’injection des traceurs dans les forages supérieurs est indiquée par la ligne pointillée verticale.

FIGURE 4.3 – *Specific conductivity measured in the boreholes Perm 9 (green), Perm 10 (red) and Perm 5 (blue). Solid lines correspond to continuous monitoring in the boreholes with CTD-Diver sensors. Symbols correspond to conductivity measurements done in the laboratory in water samples. Injection of aqueous tracers in the upper boreholes is indicated by the dashed vertical line.*

alors qu’il en reste encore en quantités importantes dans les forages Perm 6 et Perm 8.

Les résultats obtenus permettent d’identifier les connexions, directes ou non, entre les différents forages. Dans le forage Perm 10, l’arrivée simultanée de deux traceurs indique que le forage est alimenté par une zone de fracture principale, elle-même alimentée par les forages Perm 7 et 8. Dans le forage Perm 5, les trois traceurs injectés arrivent successivement, ce qui indique l’existence de plusieurs fractures alimentant le forage. Le traceur KBr arrive puis décroît rapidement : la zone de fracture qui relie les forages Perm 7 et Perm 5 présente un débit d’eau important, ce qui évacue rapidement le volume de solution marquée injectée dans Perm 7, en accord avec la faible conductivité mesurée dans ce forage deux mois et demi après l’injection. La persistance de concentrations élevées en traceurs après le pic de KBr, et pendant plusieurs mois après l’injection, montre l’existence d’autres fractures, moins directes, alimentées en traceurs depuis les forages d’injection, et qui alimentent les forages Perm 5 et Perm 10.

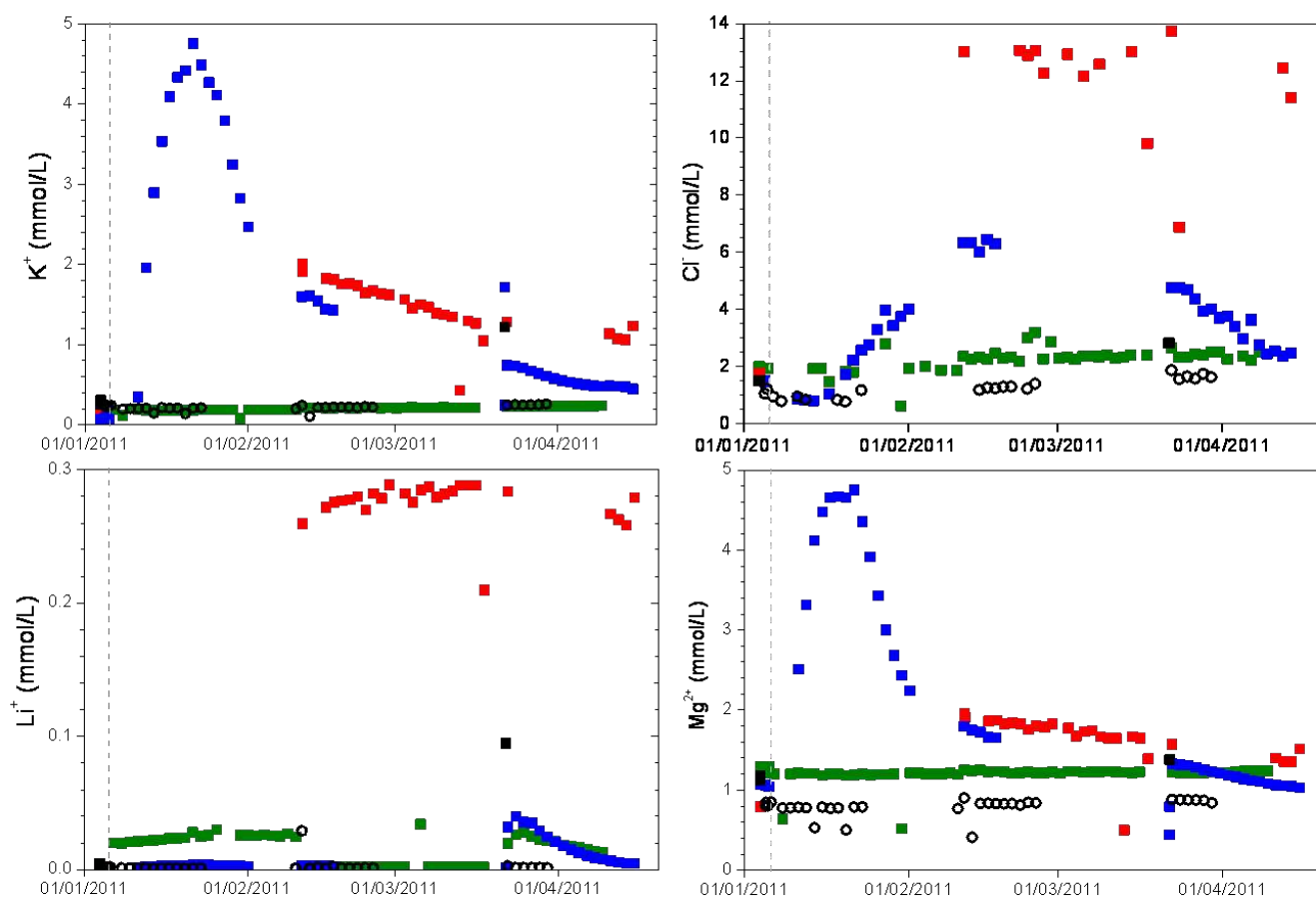


FIGURE 4.4 – Concentrations en K^+ , Li^+ et Cl^- , ions injectés, et en Mg^{2+} , ion non injecté, mesurées dans les forages Perm 9 (vert), Perm 10 (rouge) et Perm 5 (bleu), et dans l'eau de percolation en FZ2 (cercles noirs).

FIGURE 4.4 – K^+ , Li^+ , Cl^- (injected) and Mg^{2+} (not injected) concentrations measured in the boreholes Perm 9 (green), Perm 10 (red) and Perm 5 (blue), and in dripping water at FZ2 (black circles).

Les dilutions au cours de la migration sont d'abord évaluées à partir des anions, qui sont des traceurs parfaits. Concernant Br^- , on n'observe pas de dilution entre les forages Perm 7 et Perm 5, et une dilution faible, d'un facteur inférieur à 10, entre les forages Perm 7 et Perm 10. Pour Cl^- , la dilution entre l'injection et la percée est d'un facteur inférieur à 20. Ceci confirme que les forages Perm 7 et Perm 5 sont directement connectés par une fracture importante. Les connexions entre les forages Perm 6 et Perm 8, et le forage Perm 5 ne sont pas directes ; plusieurs fractures doivent être impliquées, qui recoupent également des fractures conduisant de l'eau non marquée. Ceci expliquerait l'allongement du temps de migration et la dilution.

Les dilutions mesurées pour les cations sont plus importantes que pour les anions, d'un facteur 20 pour K^+ dans le forage Perm 5 à près de 1000 pour Li^+ dans le forage Perm 10. Sur la Figure 4.4, on observe par ailleurs une augmentation de la concentration en Mg^{2+} , en particulier dans le forage Perm 5 et un peu dans le forage Perm 10, simul-

tanément à la percée des traceurs. Les concentrations en cations Ca^{2+} et Na^+ montrent des évolutions similaires, alors qu'aucun de ces cations n'a pas été injecté et que les eaux de percolation naturelle ne montrent pas cette augmentation. Pour interpréter ces résultats, l'existence d'un échange cationique est proposée, comme cela avait été observé lors du traçage salin entre la carrière et le tunnel (Pili *et al.*, 2008a). Les phyllosilicates, argiles ou chlorite, présents dans les remplissages des fractures, contiennent différents cations à leur surface, qui sont mobiles et s'échangent avec les cations injectés.

Dans le forage Perm 9, on n'observe la percée d'aucun traceur. Le débit d'eau dans ce forage est très important, nettement supérieur à ceux mesurés dans les autres forages de la rosace. Ceci indique que le forage recoupe une fracture importante, plus directement connectée avec la surface, et alimentée par d'autres chemins que ceux passant par les forages d'injection. L'existence d'une connexion importante et plus directe avec la surface est également suspectée pour la zone de fracture FZ2, qui présente de forts débits.

Dans le forage Perm 4, le débit d'eau est quasiment nul, ce qui indique qu'il ne recoupe aucune fracture conductrice. Aucune arrivée de traceur n'a pu y être mesurée.

Les résultats obtenus lors de ce traçage aqueux peuvent être comparés à ceux obtenus en mai 2010, lors de traçages par injection d'air contenant 1 000 ppm de SF_6 entre ces forages (Guillon, 2010). L'injection dans le forage Perm 10 avait montré une sortie uniquement dans le forage Perm 9, alors que l'injection dans le forage Perm 4 avait montré des sorties dans les forages Perm 10 et Perm 7. A partir du traçage salin, on observe bien une connexion, probablement indirecte, entre les forages Perm 7 et Perm 10, mais on n'observe pas la connexion avec le forage Perm 4 vue avec le traçage gazeux. Ces différentes observations peuvent être réconciliées si on tient compte de la double porosité : l'injection d'air dans le forage Perm 4, non fracturé, a alimenté une ou des fracture(s) connectées aux forages Perm 10 et Perm 7. L'eau marquée injectée dans les forages supérieurs a migré rapidement dans les fractures, sans envahir la matrice. La connexion indirecte observée ici entre les forages Perm 8 et Perm 5 ne passerait quant à elle pas à proximité de Perm 4, ce qui expliquerait l'absence de percée du SF_6 dans ces forages.

4.1.3 Conclusion

Les résultats de ces traçages aqueux confirment l'hétérogénéité spatiale très importante du milieu fracturé, même à l'échelle de quelques mètres, comme cela a déjà été illustré à plusieurs reprises. Ces résultats montrent l'existence de longueurs de connexion variables des fractures, organisées en réseaux complexes. Certains réseaux sont connectés à plus longue distance et drainent bien les eaux de surface, d'autres sont connectés à plus courte distance et n'ont qu'un rôle local. Ceci est cohérent avec l'analyse stéréologique menée par Patriarche *et al.* (2007) à partir des relevés des fractures dans le tunnel.

Ces expériences confirment que, dans la zone non saturée, les fluides migrent essentiellement dans les fractures. Une cartographie au premier ordre du réseau de fractures, à l'échelle métrique, a également pu être réalisée.

4.2 Traçages à l'échelle de 55 m entre la chambre isolée et l'atmosphère

Une grande force du Laboratoire Naturel de Roselend s'est révélée être la possibilité qu'il offre d'étudier la migration des gaz à l'échelle de plusieurs dizaines de mètres dans la zone non saturée, en particulier grâce à la réalisation d'expériences de traçages. En 2003, un traçage salin avait été réalisé de haut en bas (Pili *et al.*, 2008a). Ce traçage avait démontré l'existence d'un réseau de fractures percolant entre la carrière et le tunnel. Le Laboratoire Naturel de Roselend se comporte ainsi comme une colonne 1D verticale de roche de 55 m de hauteur. L'idée a alors été de renverser le problème, pour s'intéresser à la migration des gaz de bas en haut. Cette thèse a permis de démontrer la faisabilité de tels traçages ascendants, du tunnel vers la carrière, et d'exploiter de telles expériences.

Pour cela, il a d'abord fallu créer les dispositifs permettant l'injection des gaz en profondeur et la mesure des courbes de percée en surface. Leurs caractéristiques ont été définies en s'aidant de la revue bibliographique des traçages gazeux présentée en Section 1.2. La chambre C délimitée par le mur étanche avec les platines de connexion pour l'échantillonnage et l'injection des fluides permet de connaître et contrôler le terme source. Ensuite, le suivi de la dynamique naturelle des gaz dans le forage SCH1 a validé la capacité à y mesurer *in situ* les courbes de percée. Enfin, la capacité à réaliser et à interpréter des expériences de migrations de gaz traceurs dans les roches fracturées du Laboratoire Naturel de Roselend a été confirmée par les traçages réalisés à l'échelle métrique entre les forages Perm de la paroi de la chambre. Une dernière inconnue restait : existe-t-il un ou des chemins de migration pour les gaz entre la chambre C et le forage SCH1 ?

Le traçage n°1, réalisé en juillet 2011, a démontré la faisabilité de telles expériences et l'existence de connexions *i.e.* d'un réseau de fractures percolant entre la chambre C et la surface, à l'échelle de 55 m. Ce premier traçage a permis de tester les protocoles d'injection dans la chambre et de détection en surface, et d'obtenir des ordres de grandeur de la dilution et du temps de migration des traceurs à l'échelle de 55 m. Ce retour d'expérience a permis d'améliorer de manière importante les protocoles lors du traçage n°2 réalisé en octobre 2012, avec une pression d'injection inférieure à celle appliquée en 2011. Les conditions expérimentales des traçages n°1 et 2 sont récapitulées dans le Tableau 4.1.

Une approche graduelle a ainsi été utilisée pour mettre au point et valider par étapes les protocoles expérimentaux. Cette approche est nécessaire, car il n'est possible de réaliser qu'une seule injection de chaque traceur, le massif restant ensuite contaminé pour longtemps par le traceur. Dix ans après le traçage au sel réalisé depuis la carrière (Pili *et al.*, 2008a), des concentrations anormalement élevées en ions Na^+ et Cl^- sont ainsi encore mesurées dans les eaux de percolation du tunnel. De plus, les coûts des traceurs utilisés sont croissants.

Les conditions qui règnent après une explosion nucléaire souterraine sont extrêmes : température supérieure à 100 °C pendant plusieurs mois (Johnson et Violet, 1958; Taylor, 1973), surpression initiale de plusieurs milliers de bar qui décroît entre 10 et 100 bar en quelques heures (Bouchez et Lecomte, 2000; Hudson *et al.*, 1989), pour des profondeurs entre 100 et 1000 m (Schoengold *et al.*, 1996). Les expériences de traçages

réalisées au Laboratoire Naturel de Roselend ne cherchent pas à reproduire exactement ces conditions, mais elles cherchent à étudier certains processus déterminants pour la migration des gaz. De plus, les derniers mètres de migration sous la surface au-dessus d'une cavité après une explosion nucléaire souterraine sont dans tous les cas directement analogues à la situation étudiée au Laboratoire Naturel de Roselend. Dans notre cas, les effets liés à la température ne sont pas directement étudiés. Les conditions d'injection sont choisies pour étudier spécifiquement la migration des gaz d'une part par l'advection, d'autre part par le pompage barométrique, les deux mécanismes connus pour être mis en jeu dans un contexte d'explosion nucléaire souterraine.

Dans cette section, les protocoles expérimentaux utilisés lors des traçages n°1 et 2 sont d'abord présentés. Les résultats et les discussions font l'objet d'un article en préparation, inséré sous cette forme dans le manuscrit, et d'une première interprétation à l'aide de simulations numériques. Les observations des traceurs sur le long terme sont ensuite présentées et discutées.

TABLEAU 4.1 – Synthèse des conditions expérimentales et des résultats lors des deux expériences de traçage au gaz entre la chambre C et la surface.

TABLE 4.1 – *Summary of experimental conditions and results of the two gas tracing experiments between the chamber C and the surface.*

	Overpressure in chamber (mbar)	Injected tracer	Injection duration (h)	Injected volume (L)	Tunnel Breakthrough time (h)	Dilution	Borehole SCH1 Breakthrough time (h)	Dilution
July 11	167	SF_6	41	~1000	1.8	40	9.7	$1.7 \cdot 10^4$
Oct 12	20	3He	1	2	<74	660	45 ± 5	$2.8 \cdot 10^6$
	20	SF_6	215	4600	11.2	1300	-	-
	20	R134a	215	2800	11.2	800	-	-

4.2.1 Protocoles expérimentaux

Après avoir discuté les critères ayant conduit au choix des traceurs utilisés, les protocoles expérimentaux qui ont été développés pendant cette thèse sont ici décrits. Ces protocoles permettent d'une part l'injection contrôlée dans la chambre d'un ou de plusieurs traceurs disponibles en quantités limitées et le suivi des conditions de pression et de concentrations dans la chambre (*i.e.* du terme source), et d'autre part le suivi des courbes de percée en sub-surface, *in situ* ou à partir d'échantillons discrets prélevés à intervalles réguliers et analysés au laboratoire.

4.2.1.1 Choix des traceurs

Le choix et la mise en œuvre des gaz traceurs, ainsi que des moyens de détection et de suivi temporel, ont fait l'objet d'une réflexion prenant en compte les performances, les coûts, les avantages, les inconvénients et les risques.

Pour le traçage n°1, en juillet 2011, le traceur retenu a été le SF_6 , en raison de son faible coût, et de la capacité à le mesurer en continu dans les forages avec une limite

de détection de seulement quelques ppb grâce aux analyseurs photo-acoustiques (Innova 1412, LumaSense, cf. Annexe E). Le SF_6 avait en effet déjà été utilisé en mai 2010 pour le traçage entre les forages Perm, dans le cadre de mon Master 2 (Guillon, 2010). Avant le traçage n°1, les ordres de grandeurs de la dilution du traceur entre l'injection et la percée en sub-surface étaient inconnus. Une concentration de 100 ppm de SF_6 injectée dans le forage Perm 4 avait entraîné des percées de plusieurs ppm clairement mesurables après une migration de l'ordre de 1 m. Pour pouvoir détecter le SF_6 en sub-surface après 50 m de migration, une concentration plus élevée de 1 000 ppm a été choisie pour la première injection dans la chambre.

Pour le traçage n°2 en octobre 2012, le traceur retenu a été l'hélium-3. Il peut se détecter à très bas niveau du fait de sa très faible abondance dans l'atmosphère (7 ppt), mais sa concentration ne peut pas être mesurée en ligne sur le terrain, ce qui empêche de suivre facilement le déroulement du traçage. Il faut en effet recourir à des prélèvements et des analyses au laboratoire par spectrométrie de masse après purification (cf. Annexe E), avec seulement quatre analyses possibles par jour. Pour ne pas effectuer des prélèvements et des mesures d'hélium-3 en aveugle, deux traceurs annexes pouvant être mesurés en temps réel sur le terrain ont été injectés en même temps que l'hélium-3, SF_6 et R134a. La mesure de ces deux traceurs annexes devait permettre d'identifier l'arrivée des traceurs dans le forage SCH1, et de réaliser alors les prélèvements pour l'hélium-3. En raison du coût et de la rareté de ce traceur, la quantité d'hélium-3 disponible était de 2 L. Suite au traçage n°1 au SF_6 , la concentration résiduelle en SF_6 dans le milieu était de quelques ppm. La quantité utilisée lors du traçage n°2 a été choisie suffisamment importante pour que la percée en surface soit supérieure à cette valeur résiduelle. L'injection de R134a a été réalisée simultanément à celle du SF_6 , et la quantité utilisée correspond à l'intégralité de la quantité disponible.

Les propriétés de ces trois gaz ont été présentées dans le Tableau 3.1. L'hélium-3 a une masse moléculaire 30 à 50 fois plus faible et un coefficient de diffusion 10 fois plus élevé que ceux de SF_6 et R134a. Ce contraste de propriétés a été un critère important dans le choix des traceurs utilisés, afin de pouvoir mettre en évidence un fractionnement des gaz lié à la diffusion.

4.2.1.2 Injection des traceurs dans la chambre

Le traçage n°1 a été réalisé le 27 juillet 2011. Du SF_6 pur a été injecté à partir d'une bouteille B20 (Air Products) afin d'obtenir en quelques minutes une concentration de 1 000 ppm dans la chambre. Tout au long de l'injection, la concentration en SF_6 dans la chambre a été mesurée avec un analyseur infrarouge Binos (Rosemount). Le débit d'injection du traceur était ajusté en fonction des mesures, jusqu'à atteindre la concentration cible de 1 000 ppm. L'homogénéité de la concentration en SF_6 dans la chambre était assurée par un ventilateur industriel de débit 1400 m³/h. La chambre a ensuite été pressurisée à + 167 mbar au dessus de la pression atmosphérique pendant 4 heures à l'aide d'une turbine Elmo-Rietschle. Un volume d'air du tunnel d'environ 12 m³ a ainsi été injecté dans la chambre. La pression a ensuite décliné naturellement du fait de la perméabilité du milieu. Une seconde mise sous pression similaire à la première a eu lieu 24 heures après.

Afin de tester l'étanchéité du dispositif délimitant la chambre, une mesure de la

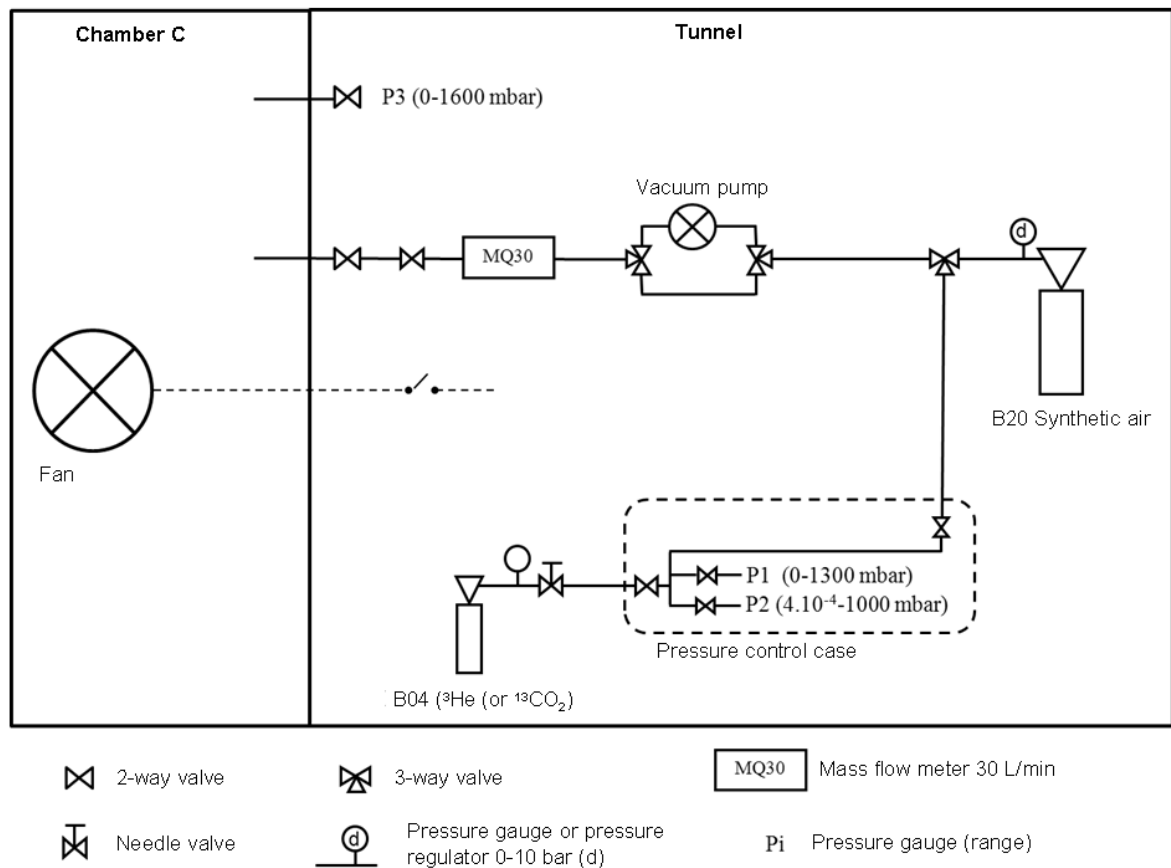


FIGURE 4.5 – Montage expérimental pour l’injection d’hélium-3 dans la chambre isolée C lors du traçage n°2. La ligne d’injection, en tubes inox et PFA 1/4” (Swagelok), comporte un ensemble de vannes à membrane, à boisseau sphérique ou à pointeau (Swagelok), un capteur de pression P1 (Baratron 722B, MKS), une jauge à vide P2 (Pirani AP2004, Adixen), une pompe à vide (N920, KNF), un débitmètre massique (SLA5860S, Brooks), une bouteille B04 d’hélium-3 et une bouteille B20 d’air synthétique (Air Products), munies de leurs manomètres (Swagelok) ou mano-détendeurs (FE62, Messer). Le capteur de pression P3 (PTI-S, Swagelok) permet de vérifier que l’injection de traceur n’augmente pas la pression de la chambre au-delà de 20 mbar.

FIGURE 4.5 – Experimental set-up used for the injection of ^3He in the chamber C during tracing experiment TE₄. The injection line consists of stainless steel and PFA 1/4” tubes (Swagelok), with several valves (Swagelok), a pressure sensor P1 (Baratron 722B, MKS), a vacuum gauge P2 (Pirani AP2004, Adixen), a vacuum pump (N920, KNF), a mass flow meter (SLA5860S, Brooks), a B04 cylinder containing ^3He and a B20 synthetic air cylinder (Air Products) with pressure regulators (Swagelok or Messer). The pressure sensor P3 (PTI-S, Swagelok) is used to check that injecting the tracer gases does not increase the pressure in the chamber more than 20 mbar.

concentration en SF_6 a été réalisée devant le mur et la porte durant toute la période d’injection. Aucune fuite directe de SF_6 n’a été détectée, mis à part une venue de forte intensité au niveau d’une fracture de la roche située à quelques centimètres du mur étanche, sur la paroi Sud du tunnel. Ce traçage n°1 valide ainsi la résistance et l’étanchéité du dispositif constitué du mur, de la porte, et des platines de connexion.

La quantité totale de SF_6 injectée n'a pas pu être entièrement mesurée avec le débitmètre massique utilisé (SLA8560, Brooks), car le débit nécessaire dépassait la gamme de l'instrument. La perte de masse de la bouteille de SF_6 a été déterminée après le traçage par pesée (balance Combics, Sartorius). Elle vaut 7,1 kg, ce qui correspond à une injection de 1 100 L de SF_6 .

Après la deuxième mise sous pression, la chambre isolée a été ventilée le 29 juillet 2011 pendant 3 heures en inversant le sens de fonctionnement de la turbine. La chambre a été mise en dépression de -20 mbar pendant 2h40. Après équilibration des pressions, la porte étanche a ensuite été ouverte. Une concentration d'environ 150 ppm de SF_6 a alors été mesurée dans la chambre. Celle-ci a été ventilée à nouveau avec de l'air extérieur grâce à la turbine, ce qui a contribué à diminuer la concentration jusqu'à ce qu'elle ne soit plus mesurable.

L'emploi d'une injection de courte durée est justifiée d'une part parce qu'il s'agit d'un premier traçage de démonstration, pour lequel une sollicitation modeste est suffisante, et d'autre part parce que la turbine utilisée pour l'injection s'est révélée insuffisante pour maintenir la chambre en pression sur des durées plus longues.

Pour le traçage n°2 en 2012, il a été choisi de ne pas augmenter la pression dans la chambre lors de l'injection des gaz au-delà d'une surpression de 20 mbar, soit une pression totale d'environ 870 mbar (2,5 % de plus que la pression atmosphérique moyenne sur le site). Une surpression de 20 mbar correspond, d'une part, à l'amplitude des fluctuations barométriques naturelles mesurées sur le site (Richon *et al.*, 2005; Guillon *et al.*, 2013), et d'autre part, à 10 % de la surpression créée lors du traçage n°1 en 2011. D'après les tests d'injection pneumatique réalisés dans la chambre C et la valeur estimée pour la perméabilité à l'air (Chapitre 2), le débit d'injection devait être au maximum de 0,7 L/min pour avoir une surpression de 10 mbar dans la chambre, sur la base d'une pression atmosphérique de 850 mbar.

Deux litres d'hélium-3 enrichi à 99,7 % (Euriso-top), conditionné à 5 bar dans une bouteille B04 (de volume 400 cm³), ont été utilisés. Étant donné le rapport des volumes, l'injection de 2 litres de gaz dans la chambre isolée de 60 m³ ne crée pas de surpression. La quantité d'hélium-3 disponible étant faible et son coût très élevé, l'objectif était donc d'injecter l'hélium-3 disponible avec le meilleur taux de récupération possible. Pour cela, une ligne d'injection a été construite (Figure 4.5) afin de pouvoir :

- détendre l'hélium-3 sous pression dans la bouteille (400 cm³, 5 bar) vers la chambre isolée (850 mbar),
- tirer au vide (30 mbar) les 400 cm³ d'hélium-3 restants à la pression atmosphérique,
- rincer la bouteille par une succession de remplissages à 1300 mbar avec de l'air synthétique (mélange N_2-O_2), détentes dans la chambre, puis tirages au vide (30 mbar), répétée 5 fois.

Les pressions ainsi que les débits de gaz liés à ces manipulations ont été enregistrés. L'étanchéité de la ligne d'injection a été évaluée en la mettant sous vide (5 mbar), puis en l'isolant et en mesurant la remontée de la pression (cf Annexe F). Le taux de fuite est inférieur à $6 \cdot 10^{-4}$ mbar·L⁻¹·s⁻¹, pour un volume de ligne de 0,2 L, et une durée d'injection d'environ 45 minutes. Les fuites de traceur dans le tunnel au cours de l'injection sont donc négligeables. Comme présenté au Chapitre 3, le protocole d'injection d'hélium-3 avait préalablement été testé et validé avec 2 litres de ¹³CO₂ conditionnés comme l'hélium-3, et montrait un rendement supérieur à 99,96 %.

Afin de pouvoir détecter les traceurs annexes, SF_6 et R134a en surface, il était nécessaire d'en injecter de fortes quantités. La dilution attendue est en effet importante, la limite de détection pour le R134a est d'une centaine de ppb et la concentration résiduelle en SF_6 issue du traçage n°1 est entre 1 et 3 ppm. Au total, 30,2 kg de SF_6 (soit 4 600 L) et 12,5 kg de R134a (soit 2 800 L) ont été injectés dans la chambre isolée (Tableau 4.1). Les débits d'injection des traceurs annexes ont été choisis pour rester toujours inférieurs à 0,7 L/min (cf ci-dessus), un compromis devant être fait entre la limitation de la surpression créée, et la limitation de la durée de l'expérience. Les débits ont été ajustés pendant l'injection, en fonction de l'augmentation de pression observée dans la chambre.

Les lignes d'injection pour chacun des traceurs annexes SF_6 et R134a sont présentées dans la Figure 4.6. La ligne pour l'injection du SF_6 comprenait un débitmètre massique mesureur de gamme 27 L/min (SLA5861S, Brooks), un bypass et des vannes. La bouteille de SF_6 était par ailleurs pesée en continu avec une balance (Combics, Sartorius), avec une précision de 1 g sur 150 kg. Cet autre moyen de suivre le débit d'injection est insensible à l'état du gaz (nature, température, phase). La ligne pour l'injection du R134a comprenait un débitmètre massique régulateur de gamme 30 L/min (SLA5851S, Brooks), un bypass et des vannes. L'étanchéité des lignes d'injection de SF_6 et de R134a a été vérifiée par une mise en surpression à 1500 mbar et la recherche de bulles à l'aide d'un tensioactif. Le taux de fuite dans ce cas est inférieur à $10^{-2} \text{ mbar} \cdot \text{L}^{-1} \cdot \text{s}^{-1}$ (Annexe F).

Lors de ce traçage n°2, l'évolution des concentrations en traceurs dans la chambre n'a pas été suivie directement. Les analyseurs photo-acoustiques n'ont pas permis la mesure des teneurs très élevées en SF_6 et R134a. Seuls quelques prélèvements ont été effectués. Un cylindre d'échantillonnage, initialement sous vide, était connecté à la chambre via un tube en PFA 1/4" (Swagelok) de longueur 1 m pendant 15 minutes afin de laisser le gaz s'homogénéiser. Les quelques mesures réalisées sur ces prélèvements avec un spectromètre de masse quadripolaire (UGA200, Stanford Research Systems) se sont heurtées à la grande variabilité des pressions entre échantillons, et à leur grande différence avec les étalons, ce qui n'a pas permis la quantification. Les concentrations en O_2 , SF_6 et R134a ont été déterminées dans trois prélèvements par spectrométrie de masse (MAT271, Thermo Electron Corporation) par le Département de physico-chimie (CEA Saclay). Le terme source dans la chambre a ainsi pu être reconstruit, moyennant quelques approximations.

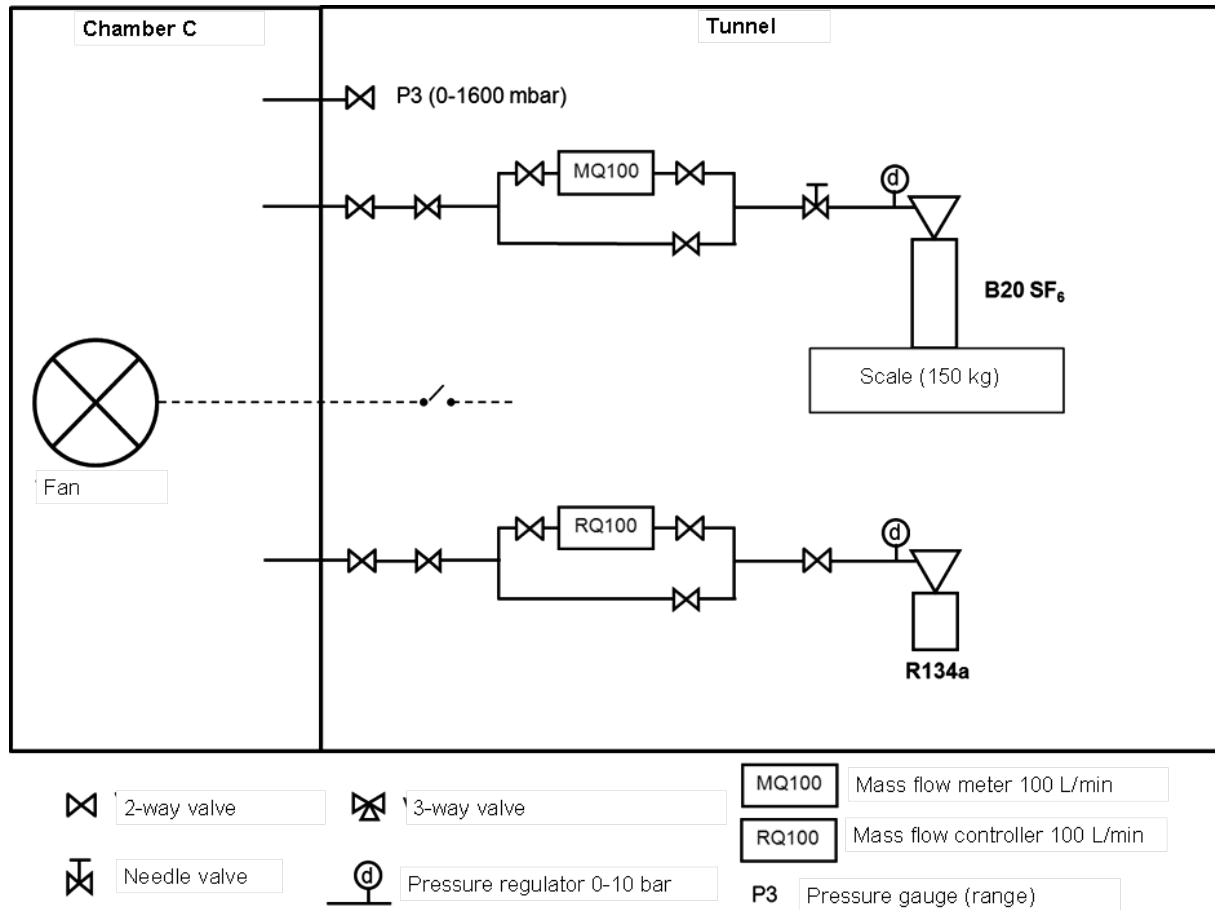


FIGURE 4.6 – Montage expérimental pour l'injection de SF_6 et $R134a$ dans la chambre isolée C lors du traçage n°2. Les lignes d'injection, en tubes inox et PFA 1/4" (Swagelok), comportent chacune un ensemble de vannes à boisseau sphérique ou à pointeau (Swagelok), un débitmètre massique mesureur ou régulateur (les gammes sont données pour l'air), une bouteille de SF_6 ou de $R134a$, munies de leurs mano-détendeurs (FE62, Messer). Une balance permet d'enregistrer la perte de masse de la bouteille de SF_6 au cours de l'injection. Le capteur de pression P3 permet de vérifier que l'injection de traceur n'augmente pas la pression de la chambre au-delà de 20 mbar.

FIGURE 4.6 – Experimental set-up used for the injection of SF_6 and $R134a$ in the chamber C during tracing experiment TE#2. Each injection line consists of stainless steel and PFA 1/4" tubes (Swagelok), with several valves (Swagelok), a mass flow controller (ranges are given for air), a cylinder with SF_6 or $R134a$ with a pressure regulator (FE62, Messer). A scale is used to monitor the mass loss of SF_6 cylinder during the injection. The pressure sensor P3 (PTI-S, Swagelok) is used to check that injecting the tracer gases does not increase the pressure in the chamber more than 20 mbar.

4.2.1.3 Suivi de la percée des traceurs en surface

Le suivi des concentrations en traceurs dans la chambre isolée C et dans le tunnel, ainsi que dans les forages verticaux SC et dans le forage sub-horizontale SCH1 a été réalisé soit à l'aide de prélèvements, manuels ou automatiques, soit à l'aide de mesures en continu. Les principes généraux de mesure des gaz en zone non saturée, présentés au Chapitre 3, sont ici développés dans le cas du forage sub-horizontale SCH1, sur lequel ont été concentrés nos efforts lors des traçages n°1 en 2011 et n°2 en 2012.

Lors du traçage n°2 de 2012, des mesures ponctuelles ont également été réalisées dans les forages verticaux. Dans les forages SC4, SC6 et SC7, les concentrations en SF_6 , R134a et CO_2 ont été mesurées en continu à l'aide de trois analyseurs photo-acoustiques Innova 1412 (LumaSense). Des échantillons d'air ont également été prélevés dans ces forages. Les forages SC9 et SC10 n'ont pu être ni échantillonnés ni suivis en continu car ils sont trop peu perméables : ils se mettent rapidement en dépression, ce qui met la pompe de prélèvement (ou celle de l'analyseur) en défaut. L'air des cinq autres forages verticaux ne peut pas être analysé facilement car ils se remplissent rapidement d'eau.

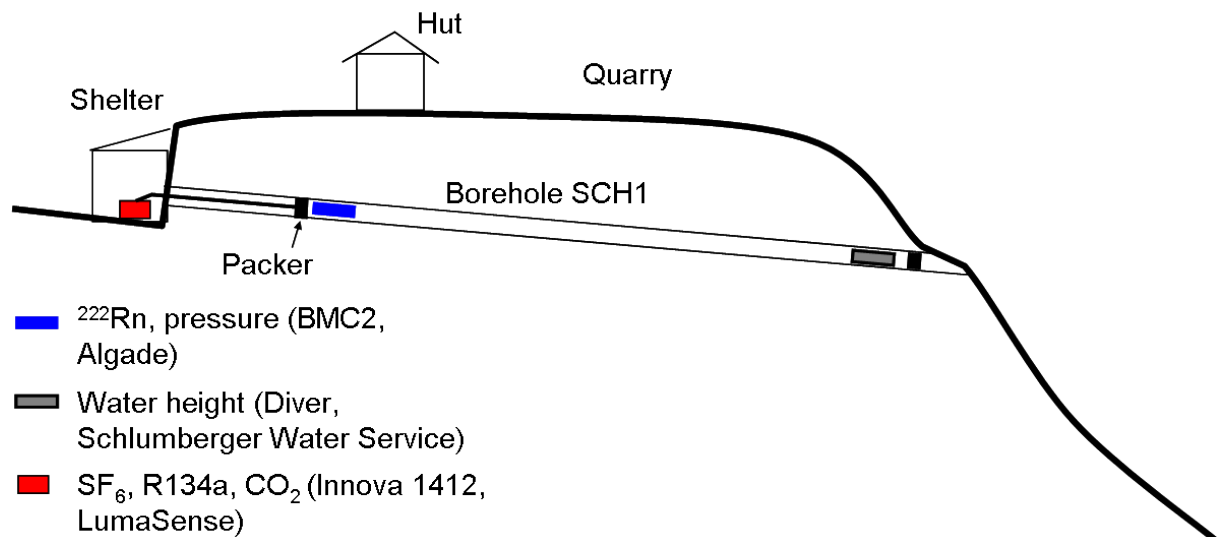


FIGURE 4.7 – Schéma de l'équipement et de l'instrumentation utilisés pour le suivi du forage sub-horizontale SCH1. Le diamètre du forage ainsi que les dimensions des instruments sont exagérés.

FIGURE 4.7 – Diagram of the equipments and instruments used for borehole SCH1 monitoring. Borehole diameter as well as sizes of the instruments are not to scale.

Le forage sub-horizontale SCH1 fait l'objet d'un suivi continu depuis le traçage n°1 au SF_6 réalisé en 2011. Une chambre de mesure de 36 m de long, soit un volume d'environ 300 L, a été délimitée par deux obturateurs gonflables (Petrometalic) de longueur 1 m, insérés à 12 m et 6 m de part et d'autre du forage (Figure 4.7) de façon à s'affranchir des connexions rapides avec l'atmosphère qui pourraient résulter de la fracturation plus importante à proximité de la surface topographique. À l'intérieur de l'intervalle de mesure aménagé dans ce forage incliné, un capteur BMC2 (Algade) situé à l'extrémité supérieure mesure *in situ* l'activité en radon-222 ainsi que la pression, et un capteur Diver (Schlumberger Water Service) à l'extrémité basse mesure *in situ* la hauteur d'eau qui s'accumule du fait des infiltrations. Grâce à un tube en PFA 1/4" (Swagelok) de

20 m de long connecté à l'obturateur gonflable supérieur, la composition de l'air du forage SCH1 est également analysée *ex situ* par un pompage modéré vers un analyseur photo-acoustique Innova 1412, qui mesure à la cadence d'une fois par heure les teneurs en SF_6 , R134a et CO_2 .

L'analyse de la composition isotopique de l'hélium ne pouvant se faire qu'au laboratoire, il était nécessaire de réaliser des prélèvements d'air. Des prélèvements manuels ont été réalisés 1 à 2 fois par jour pendant les périodes de présence au Laboratoire Naturel de Roselend. Afin de systématiser ces prélèvements et de les poursuivre lorsqu'il n'y a personne sur le site, un système de prélèvement automatique d'échantillons d'air du forage SCH1 a été développé pour le traçage n°2 en 2012. Ce dispositif est construit autour d'une vanne rotative Valco avec 16 ports 1/8" (Vici AG International). Les prélèvements ont été réalisés à l'aide de 3 jeux de 16 cylindres en inox de 10 mL de volume, équipés de 2 vannes à soufflet soudées à l'azote (Swagelok). Les cylindres ont été systématiquement mis sous vide avant prélèvement à une pression inférieure à $5 \cdot 10^{-4}$ mbar grâce à un groupe de pompage (HiCube 80 Eco, Pfeiffer). Un programmeur (6224002, Theben) permet de déclencher le balayage d'un cylindre de prélèvement par l'air du forage, puis d'isoler le cylindre prélevé et de passer au cylindre suivant par rotation de la vanne. Le balayage est effectué avec une pompe Labpump (Saphymo) pendant 8 min à un débit de 0,2 L/min, afin d'évacuer l'air contenu dans les tubes et de prélever l'air du forage. L'ensemble est alimenté en courants continus 12 V et 24 V secourus par des batteries. L'étanchéité du système de prélèvement automatique a été mesurée en mettant la ligne sous vide (30 mbar) avec une pompe à vide, et en mesurant l'augmentation de la pression une fois le système isolé. Le taux de fuite observé est inférieur à $2 \cdot 10^{-3}$ mbar \cdot L $^{-1}$ s $^{-1}$ pour l'ensemble de la ligne, quel que soit le cylindre de prélèvement connecté.

Des prélèvements ont été effectués simultanément avec la vanne automatique Valco et manuellement, avec des cylindres de prélèvement similaires et avec la même pompe, afin de contrôler le dispositif de prélèvement automatique. Pendant 6 semaines, un prélèvement a été effectué toutes les 24 heures, ce qui a nécessité des déplacements sur site toutes les 2 semaines, et une disponibilité importante du laboratoire d'analyses des gaz rares à l'Institut de Physique du Globe de Paris. Par la suite, un prélèvement a été effectué toutes les 56 heures, et une sélection des échantillons à analyser en priorité a été effectuée en fonction d'autres paramètres mesurés, notamment l'occurrence d'une dépression atmosphérique ou l'observation de variations de concentration d'autres gaz (SF_6 , R134a, CO_2 , ^{222}Rn). Ces mesures d'hélium-3 ont été réalisées par Claire Gréau. Les protocoles de purification de l'hélium et de mesure des abondances isotopiques d'hélium-4 et d'hélium-3 par spectrométrie de masse haute résolution sont présentés en Annexe E.2.2.

4.2.2 Évolutions des traceurs sur le court terme

Pour le suivi de la percée des traceurs en surface lors des traçages n°1 et n°2, on distingue le temps court, pendant les quelques jours qui suivent l'injection, et le temps long, pendant les mois voire les années qui suivent. Les résultats aux temps courts, avec la migration rapide des traceurs sous l'effet de la surpression à l'injection, sont présentés ci-après sous forme d'un article, à l'état préliminaire. Après une description des protocoles expérimentaux, les temps de percée et les facteurs de dilution observés

dans le tunnel et dans le forage SCH1 sont présentés. Ces résultats sont interprétés en termes de processus et de chemins de migration grâce à des modèles au premier ordre. L'interprétation des résultats expérimentaux à l'aide de simulations numériques 3D réalisées avec le code NUFT a été initiée. Ces simulations doivent cependant encore être améliorées pour pouvoir reproduire fidèlement les résultats expérimentaux, et n'ont pas été intégrées dans l'article pour le moment. Ce travail de simulation ainsi que la rédaction de cet article seront poursuivis dans les mois à venir.

4.2.2.1 *Gas tracing experiments at the field scale in unsaturated fractured rocks : rapid advection in response to minor overpressures (article)*

Gas tracing experiments at the field scale in unsaturated fractured rocks: rapid advection in response to minor overpressures

Sophie Guillon^{1,2*}, Eric Pili^{1,2}, Claire Gréau¹

* Corresponding author. sophie.guillon@cea.fr; +33 6 76 52 73 49

Affiliations

¹ CEA, DAM, DIF, F-91297 Arpajon, France

² Institut de Physique du Globe de Paris, Sorbonne Paris Cité, Univ Paris Diderot, UMR 7154 CNRS, F-75005 Paris, France

Abstract

Understanding gas migration in unsaturated fractured rocks from depth to the surface in response to pressure variations is of particular interest for the verification of the Comprehensive nuclear Test Ban Treaty, for the safety assessment of underground waste storages as well as for understanding precursory signals of natural hazards. The Roselend Natural Laboratory (French Alps) is a unique facility to investigate gas migration in unsaturated fractured rocks at a scale of 50 meters. Two tracing experiments using gaseous tracers were conducted between a sealed cavity at 55 m depth and a sub-horizontal observation borehole in the sub-surface. Tracer appearance in the tunnel adjacent to the cavity was also studied. Following injection of SF₆ at 167 mbar in the cavity, tracer breakthrough was measured in the observation borehole after only 10 h, with a dilution of 10⁴. Following injection of ³He at 20 mbar in the cavity, breakthrough was measured in the sub-surface after 50 h, with a dilution of 10⁶. Dilution and delay are interpreted using 1D models in order to determine the transport mechanisms and pathways. The rapid breakthroughs indicate advection in a percolating fracture network driven by injection overpressure. Tracer breakthrough monitoring at the surface requires very low detection limits because of the large dilution.

Keywords: SF₆, Helium-3, unsaturated zone, advection, pressure, fracture, dilution

1. Introduction

One of the technologies used to verify the Comprehensive nuclear Test Ban Treaty is the monitoring of radioactive noble gases in the atmosphere. Following an underground nuclear explosion, the produced gases migrate from the cavity and chimney to the surface. In the hours, days and even months following a nuclear explosion, these gases are mainly transported by advection, as a result of the initial overpressure and the water movements created by thermal gradient (Sun and Carrigan, 2012). Migration induces delay and dilution of the source term, which may hinder detection either directly at the surface or after atmospheric transport. Tracing experiments at the field scale are needed to better understand and quantify these processes (Carrigan et al., 1996; Sun and Carrigan, 2012).

Gas tracing experiments were conducted at the field scale in the framework of the understanding of leakages from a CO₂ carbon sequestration site (Cohen et al., 2013; Spangler et al., 2010) or from an underground nuclear waste repository (Ciotoli et al., 2005; Lineham et al., 1996). However these experiments were often conducted below the water table and are not relevant for migration studies in the unsaturated zone.

The Roselend Natural Laboratory (France) is an underground research facility where more than 15 years of monitoring and experiments helped understanding water and air flow in unsaturated fractured rocks (Guillon et al., 2013; Patriarche et al., 2007; Pili et al., 2008; Pili et al., 2004; Pili et al., 2012; Richon et al., 2009; Richon et al., 2005; Trique et al., 1999; Wassermann et al., 2011). A dead-end tunnel terminated by a sealed cavity allows to monitor gases at 55 m depth, while a sub-horizontal observation borehole allows to monitor gases in the sub-surface.

Here we present two gas tracing experiments conducted at the scale of 50 m with overpressures on the order on 20 to 200 mbar. SF₆, ³He and R134a, a freon, were injected in the sealed cavity. Tracer breakthroughs were monitored in the sub-horizontal observation borehole as well as in the tunnel adjacent to the cavity. This paper is organized as follows. After a description of the Roselend site, the experimental methods used for tracer injection and for breakthrough monitoring are presented. The results obtained for gas migration from the sealed cavity to the tunnel and to the sub-surface are then detailed, along with a first order interpretation using 1D models of advection in an equivalent porous medium or in a single fracture. Finally, the mechanisms controlling gas migration in unsaturated fractured zone, the transit time and dilution of tracers as well as the migration pathways are discussed.

2. The Roselend Natural Laboratory

The Roselend Natural Laboratory is located in the South-East of France, 25 km South-West of Mont-Blanc, and nearby the artificial Roselend lake. It belongs to the External Crystalline Massif of the Western Alps. The Roselend Natural Laboratory, presented in Figure 1, is composed of a dead-end horizontal tunnel at an altitude of 1576 m, located below an abandoned quarry. The tunnel is 128 m long and ca. 2.4 m in diameter. It is hosted in fractured gneisses and micaschists and capped with the same rocks with an increasing thickness from 7 m at the entrance to 55 m at its closed end (Figure 1). At the end of the tunnel, a cavity whose length and volume are 20 m and 60 m³, respectively, is sealed by a bulkhead designed to be air-tight, composed of a 40-cm thick concrete wall equipped with a door and connecting plates (Figure 1). It is referred to as chamber C (Guillon et al., 2013).

Fractures intersecting the tunnel are nearly vertical, with various trace lengths. According to fracture network reconstruction, large and small fractures are needed for the fracture networks to percolate (Patriarche et al., 2007). Tracing experiments with aqueous tracers were conducted between the topographic surface and the tunnel. They confirmed the existence of a percolating fracture network hosted in matrix rock and showed that the unsaturated zone between the surface and the tunnel can be used as a giant 1D column (Pili et al., 2008). Taking advantage of a small cliff limiting the abandoned quarry, a sub-horizontal borehole, referred to as SCH1, was drilled in the sub-surface. It is 52 m long with a 5° dip toward the lake and is open to the atmosphere on both sides. It lies above and parallel to the tunnel, with a depth below the surface ranging from 5 to 10 m (Figure 1). Orientation (dip and direction) of borehole SCH1 was chosen to maximize the number of cross-cutting fractures. Fracture density obtained in borehole SCH1 by borehole-televueur and core observation is on average 3 m⁻¹. This is ten times higher than the fracture density of 0.3 m⁻¹ obtained by Patriarche et al. (2007) for chamber C.

Both air and water permeabilities of the crystalline rocks were measured at scales of the order of 1 m to 50 m, with values in the range 10^{-17} m² to 10^{-13} m² (Guillon et al., 2013; Patriarche et al., 2007; Pili et al., 2008; Wassermann et al., 2011) depending on local fracture intensity and heterogeneity. The matrix has an air permeability of the order of 10^{-19} m². The air-filled porosity is estimated to lie between 0.2 and 5% (Guillon et al., 2013; Pili et al., 2008; Richon et al., 2005).

3. Experimental methods

Two tracing experiments, hereafter referred to as TE#1 and TE#2, were conducted between chamber C and borehole SCH1, using gaseous tracers. TE#1 was conducted on July, 27th 2011. It consisted in the injection of SF₆ at 167 mbar in chamber C during 2 days. It aimed at demonstrating the feasibility of such an experiment at the 50 m scale and the tightness of the bulkhead that isolates chamber C. TE#2 was conducted on October, 3rd 2012, and consisted in the injection of a cocktail of SF₆, R134a and ³He at 20 mbar in chamber C, during 5 days. It aimed at investigating gas migration in response to minor overpressure, and validating the capacity to monitor a noble gas and a rare isotope. During the two tracing experiments, there was ca. 5 cm of water on the floor of the chamber. Because of the air-tight bulkhead, water can indeed not flow out of the chamber, where it accumulates and slowly infiltrates downward.

The characteristics of these two tracing experiments are summarized in Table 1 and details are given below.

3.1. Tracer injection in chamber C and source term monitoring

All mountings were built with stainless steel Swagelok tubings and fittings and carefully tested for leakage before use.

For TE#1, pure SF₆ (Air Products) was injected in chamber C. SF₆ concentrations were measured in chamber C with an infrared analyzer (Binos, Emerson). SF₆ injection was stopped when a concentration of 1000 ppm was reached in the chamber. A large fan ensured homogeneity of the tracer concentration inside the chamber. The chamber was then pressurized up to 167 mbar using a blower (Elmo-Riechle). After 1 hour, the blower was stopped and the chamber pressure naturally decreased during 24 hours. Chamber C was then pressurized again during 1 hour and SF₆ was again injected up to 1000 ppm. Eighteen hours after this second pressurization, chamber C was open and ventilated.

For TE#2, ³He was injected first, then SF₆ and R134a were injected simultaneously. Two liters of ³He (99.7 % purity, Euriso-Top) were introduced into chamber C. The cylinder containing ³He pressurized at 5 bar was connected to chamber C. When the pressure equilibrium between chamber C and ³He cylinder was reached, the cylinder was pumped into chamber C using a membrane pump (N920, KNF Neuberger) down to an absolute pressure of a few millibars. The ³He cylinder was then isolated from the chamber, and synthetic air was injected into the cylinder up to 3 bar. The cylinder was then connected again to chamber C. This was repeated 5 times to ensure that more than 99.9% of the available ³He was injected in chamber C, as shown by a rehearsal made with ¹³CO₂ in the same conditions. The injected volume of ³He (2 L) is much smaller than the volume of chamber C (60 m³) and therefore no overpressure was created. Immediately following ³He injection, pure SF₆ (Air Products) and R134a (Coolair) were injected in chamber C. A total of 30.2 kg of SF₆ and 12.5 kg of R134a, corresponding to 4600 L and 2800 L respectively, were injected in chamber C to reach final concentrations of 8 % and 4 %. Instantaneous introduction of such large volumes of gases in chamber C would have led to a large pressure increase. In order to limit the overpressure to less than 20 mbar, the gases had

to be injected with a maximum flow rate of 0.6 L/min, as determined from the rock permeability of $8 \cdot 10^{-15} \text{ m}^2$ (Guillon et al., 2013). SF_6 and R134a were injected in chamber C using mass flow regulators (SLA5851S, Brooks), with a constant flow rate of 0.3 L/min for each tracer gas. Injection lasted 5 days. Monitoring of the concentrations of the injected tracers in chamber C was done by manual sampling. Stainless-steel 10 mL cylinders (Swagelok) were connected to the chamber through the connecting plate, and let equilibrate with the chamber by diffusion. These samples were analyzed for ^3He by quadrupole mass spectrometry at IPGP (Paris, France) and for SF_6 and R134a by magnetic sector mass spectrometry at CEA (Saclay, France).

3.2. Gas monitoring in the tunnel

During TE#1, SF_6 concentration was monitored in front of the air-tight bulkhead with the same infrared analyzer (Binos, Emerson) as used for the chamber monitoring. This analyzer was used in a sniffing mode to look for any leakage directly on the surface and the rim of the air-tight bulkhead.

During TE#2, a photo-acoustic analyzer (Innova 1412, LumaSense) was used to monitor SF_6 and R134a concentrations in the tunnel, with a time step of 1 minute. The analyzer was installed 5 m ahead of the bulkhead. Discrete samples were also taken in the tunnel for laboratory measurements of ^3He , SF_6 and R134a by mass spectrometry, as described above.

3.3. Gas monitoring in the sub-surface borehole

As shown on Figure 1, a 36 meter-long interval was isolated from the atmosphere in borehole SCH1 thanks to two inflatable packers introduced from both ends of the borehole. As the borehole is slightly dipping (5°), water accumulated above the lower packer. The water height in the borehole never exceeded 1 m, as recorded by a pressure gauge. ^{222}Rn activity was measured in borehole SCH1 with a time step of 1 hour. A radon probe (BMC2, Algade) was installed inside the isolated interval, below the upper packer.

A photo-acoustic analyzer (Innova 1412, LumaSense) was used for continuous monitoring of SF_6 , R134a and CO_2 concentrations in the borehole. Every hour, the analyzer's pump drew air from the borehole through a 20 m-long PFA tubing. Detection limit for SF_6 (resp. R134a) measurement is 10 ppb (resp. 100 ppb). An automatic sampler was designed to sample air from borehole SCH1 for later laboratory analysis of ^3He . This sampler is composed of a multiposition valve (EMT2ST16MWE, Vici AG International), a diaphragm pump (Labpump, Saphymo), a timer and 16 stainless-steel cylinders of 10 mL volume equipped with two bellow-sealed valves (Swagelok). Every 12 hours, the pump flushes a cylinder at 0.2 L/min flow rate with air coming from borehole SCH1. After 8 min of flush, air in the cylinder was considered to be representative of that in the borehole, the pump was stopped, the valve rotated to the next cylinder, thus isolating the sampled cylinder. Every 8 days, the 16 sampled cylinders were removed and taken back to the laboratory for helium measurement. Some manual samples replaced or backed the automated ones.

^3He was measured at IPGP (Paris, France). Samples were first processed through a purification line to separate helium from other noble gases and air components. ^3He and ^4He concentrations were then measured by a high resolution magnetic sector mass spectrometer (Noblesse, Nu Instruments). Accuracy is ensured by daily calibration using atmospheric air. Detection limit for ^3He is of the order of 3 ppt.

4. Results and modeling

In the following, dilution is defined as the ratio between the injected tracer concentration in chamber C and the tracer concentration observed at breakthrough, in the tunnel or borehole SCH1.

4.1. Source term evolution in chamber C following the injections

The evolution of the source term in chamber C during TE#1 is presented in Figure 2b. Following the first injection of SF₆ and pressurization, SF₆ concentration in chamber C decreased rapidly from 1000 to 400 ppm in only 24 hours. A second injection of tracer and pressurization were therefore conducted to reach the target SF₆ concentration and overpressure. Following TE#1, the rapid decrease of SF₆ concentration observed simultaneously with the decrease in the overpressure in chamber C indicates that the chamber is ventilated through the rock.

The evolution of the source term in chamber C during TE#2 is presented in Figure 3b. SF₆ and R134a concentrations in chamber C are estimated from the injected quantities. Mass spectrometry measurements on discrete samples confirmed that the concentrations reached 8 % of SF₆, 4 % of R134a and 33 ppm of ³He in the days following the end of the injections. The overpressure in chamber C increased in few hours up to 20 mbar and stayed constant at this value during the 5 days of the injection, as predicted with the selected flow rates. After the end of the injection, the overpressure decreased in one day down to 2 mbar.

4.2. Tracer advection between chamber C and the tunnel during injection

During TE#1, SF₆ sniffing in front of the bulkhead did not reveal any direct leakage through the bulkhead, which confirms that it is air-tight. At the end of the injection in chamber C, up to 27 ppm of SF₆ was measured in the tunnel air. SF₆ in the tunnel following TE#1 was thus diluted by a factor 40 (Table 1).

During TE#2, breakthrough of SF₆ and R134a in the tunnel occurred simultaneously, as shown in Figure 3c. This breakthrough occurred 11 hours after the beginning of injection in chamber C. With the assumption of constant overpressure in the chamber, tracer velocity v in the rock is expressed by Darcy's law:

$$v = \frac{k}{\mu} \frac{\Delta P}{H} \quad (1)$$

where k is the permeability of the rock (in m²), μ dynamic viscosity of air (1.8x10⁻⁵ Pa.s), ΔP the overpressure in chamber C (in Pa) and H the distance of migration between the chamber and the tunnel, around the air-tight bulkhead (in m). Using Equation (1), the values of injection overpressure ΔP and breakthrough time τ in the tunnel (Table 2) for a migration distance H of 5 m, an permeability of 9x10⁻¹³ m² is obtained. This value of permeability is of the same order of magnitude as the ones obtained in Guillon et al. (2013).

As long as gases were injected and chamber C was over-pressurized, SF₆ and R134a concentrations increased in the tunnel, up to a peak at 61 ppm and 50 ppm respectively, corresponding to dilutions of 1300 and 800 respectively (Table 1). When SF₆ and R134a injections were stopped and pressure in the chamber started to decrease, SF₆ and R134a concentrations in the tunnel also started to decrease (Figure 3c). This evolution can be explained by a decreasing tracer input in the tunnel when the overpressure in chamber C is decreasing. As the tunnel is ventilated by the atmosphere through its entrance (Richon

et al., 2005), the tracer input from the chamber becomes less than its loss from ventilation, leading to the observed decrease in the tracer concentrations in the tunnel.

A one-dimensional model of gas advection in porous rocks, depicted in Figure 4, is proposed to explain tracer breakthrough in the tunnel during TE#2. Tracers are transported to the tunnel driven by the overpressure in the chamber. The corresponding gas flux is calculated using Darcy's law and the assumption of steady-state advection. Another flux is due to ventilation of the tunnel by the atmosphere. The evolution of tracer concentrations in the tunnel is thus given by the mass balance equation:

$$\frac{dC_t}{dt} = \frac{S}{V} \frac{k}{\mu} C_c(t) \frac{\Delta P(t)}{L} - \lambda C_t(t) \quad (2)$$

where C_t (resp. C_c) is the tracer concentration in the tunnel (resp. chamber C), S is the surface of the chamber walls through which advection occurs (100 m^2), V is the volume of the last part of the tunnel (60 m^3), k is the permeability of the rocks (in m^2), μ is the dynamic viscosity of air ($1.8 \times 10^{-5} \text{ Pa.s}$), ΔP is the pressure difference measured between the chamber and the tunnel (in Pa), L is the equivalent 1D migration length from the chamber to the tunnel, and λ is the ventilation rate of the Roselend tunnel ($8 \times 10^{-6} \text{ s}^{-1}$, Richon et al., 2005). A permeability value of $1 \times 10^{-15} \text{ m}^2$ is taken as representative of the rock volume around the chamber, consistent with values obtained by Guillon et al. (2013). Equation (2) is solved numerically by finite difference in Matlab (Matworks). Estimated SF_6 and R134a concentrations in chamber C and pressure difference between the chamber and the tunnel, shown on Figure 3b, are taken as boundary conditions. With an equivalent migration distance L of 15 m, the measured concentrations in the tunnel are satisfactorily reproduced by the model, as shown in Figure 3c.

4.3. Vertical tracer advection in few fractures between chamber C and borehole SCH1

Following TE#1, SF_6 breakthrough in the sub-surface observation borehole SCH1 was measured after only 10 hours (Figure 2a). SF_6 concentration increased in few hours and reached a plateau at 60 ppb, corresponding to a large dilution of 1.7×10^4 . As shown in Figure 2b, increases in the concentrations of ^{222}Rn and CO_2 were observed simultaneously with this SF_6 breakthrough. The naturally occurring gases ^{222}Rn and CO_2 are thus co-transported with the injected tracer.

Following TE#2, ^3He breakthrough was measured in the observation borehole after 45 hours (Figure 3a). ^3He concentration increased from 7 ppt, its baseline value in the borehole and in the atmosphere, up to a plateau at 20 ppt, which corresponds to a large dilution of 2.8×10^6 . After 39 hours at this plateau, ^3He decreased in 80 hours back to its baseline value.

During the 12 months following TE#2, no breakthrough of R134a has been measured in the observation borehole (Figure 3a). If the dilution obtained for ^3He is transposed to R134a , a breakthrough of 0.02 ppm of R134a would have been awaited in the observation borehole. The background concentration of 0.2 ppm (Figure 3a), corresponding to the detection limit, did not allow to measure such a breakthrough.

Regarding SF_6 , the same reasoning leads to an awaited breakthrough of 0.03 ppm of SF_6 in the observation borehole. Before starting TE#2, SF_6 background concentration in the observation borehole was 1.3 ppm. Such a high value was a consequence of TE#1. As shown in Figure 3a, the breakthrough of SF_6 injected during TE#2 was not measured. SF_6 concentration in the observation borehole progressively decreased during TE#2 down to 0.3 ppm, and then increased back to its initial value.

Immediately after the beginning of tracer injection in chamber C, ^{222}Rn activity increased slightly and then showed the same evolution as SF_6 . CO_2 concentration stayed constant during TE#2. The differences in CO_2 and ^{222}Rn concentrations in borehole SCH1 during TE#1 and TE#2 must be due to differences in environmental conditions (water saturation, pressure variations).

These early and tiny arrivals of injected tracers, SF_6 for TE#1 and ^3He for TE#2, are not consistent with migration in a porous medium with a permeability of $1 \times 10^{-13} \text{ m}^2$, the representative value obtained in Guillon et al., (2013) for the rock massif. They imply migration in a fracture network with a higher permeability.

Similarly, the large dilutions observed in borehole SCH1 are not compatible with migration in a porous medium. In such case, we would expect that the injected tracer volume be diluted in the porosity of the rock. When reaching the surface, the contaminated volume would be approximately that of a hemisphere of radius 55 m, as downward migration was prevented by the water layer on the chamber floor. The corresponding expected dilution would be of a factor between 10 and 200 depending on the total porosity (between 0.2 and 5 %). The observed large dilution indicates migration of an aliquot of tracer in a limited number of percolating fractures.

A conceptual model, described in Figure 5, is proposed to explain these results. A single vertical fracture is used to represent the high permeability fracture network linking chamber C and borehole SCH1. Evolutions of the concentrations of tracer and naturally occurring gases in the observation borehole result from the combination of gas advection in the fracture driven by the overpressure in chamber C and ventilation of the borehole by the atmosphere through the few meters of overburden.

First, an equivalent fracture aperture can be estimated from the breakthrough times of the tracers in borehole SCH1. With the assumption of constant overpressure in the chamber, tracer velocity v in the fracture is expressed by Equation (1). Following Koudina et al. (1998), the permeability k of an open fracture of aperture b can be expressed by:

$$k = \frac{b^2}{12} \quad (3)$$

where b is the aperture of the fracture (in m). Using Equations (1) and (3) and the values of injection overpressure ΔP and breakthrough times τ for a migration distance H of 50 m (Table 2), equivalent apertures b of 31 μm and 38 μm are obtained for TE#1 and TE#2 respectively. The fracture apertures obtained from the two tracing experiments are similar, which confirms that overpressure in chamber C is the driving mechanism for gas migration to the surface.

The obtained fracture apertures thus correspond to permeabilities of 7.1×10^{-11} and $12 \times 10^{-11} \text{ m}^2$, respectively, more than 3 orders of magnitude higher than the values obtained in Guillon et al. (2013) for the bulk rock, but consistent with fracture networks.

Then, the evolution of the tracer concentration in the observation borehole is obtained by the mass balance equation:

$$\frac{dC_{bh}}{dt} = \frac{l}{V_{bh}} \frac{b^3}{12\mu} C_c(t) \frac{\Delta P(t)}{H} - \lambda_{bh} C_{bh}(t) \quad (4)$$

where C_{bh} (resp. C_c) is the tracer concentrations in the observation borehole (resp. chamber C), l is the horizontal length of the fracture (in m), $\Delta P(t)$ the overpressure in

chamber C (in Pa) and λ_{bh} the ventilation rate in borehole SCH1 (in s^{-1}). Equation (4) is solved numerically by finite difference in Matlab (Matworks). Estimated 3He concentration and overpressure in chamber C, shown on Figure 3b, are taken as boundary conditions. With a fracture aperture of 38 μm , a fracture length of 0.1 m and a ventilation rate λ_{bh} of $8 \times 10^{-5} s^{-1}$, the maximum concentration of 20 ppt of 3He in borehole SCH1 as well as the shape of 3He evolution are well reproduced (Figure 3a).

5. Discussion

Early detection of tracer breakthrough is possible at the surface at very low levels. How early one is able to detect a nuclear explosion or any release of tracer at depth is a matter of detection limit and dilution. When a percolating fracture network does exist, there will be an early release at the surface, in the hours to days following the explosion. Depending of the fracture network in the specific site, it could be barely detectable.

In the sub-surface, all gases of natural and artificial origins show similar temporal evolutions. This is a crucial point as it could be used to determine the appropriate time for sampling tracer breakthrough by simple monitoring of CO_2 or ^{222}Rn . This would allow to limit the number of samples to be analyzed, when the tracer measurement in the laboratory is expensive and time consuming.

Here we show that non-injected gas concentration in the sub-surface respond to injection and tracer breakthrough, but we could not observe a repeatable pattern. More work is needed to find systematic relations.

6. Conclusion

In this paper, we show that gases migrate rapidly in few fractures of a percolating network. Gas advection is driven by minor overpressures, of few mbar up to few hundreds of mbar. Only a small amount of the injected gases appears to reach the surface, rendering difficult the detection of these small seepages.

Acknowledgments

We thank Roger Sestier-Carlin for his help in preparing and conducting experiments. We thank Manuel Moreira at IPGP for supporting the numerous measurements of helium-3 and the Département de Physico-Chimie at CEA Saclay for the mass spectrometry analyses. People from Autochim and LumaSense are acknowledged for their availability and technical support with the photo-acoustic analyzers. Thanks go to the city of Beaufort for giving us access to the Roselend Natural Laboratory. This is IPGP contribution number 3438.

References

- Carrigan, C.R., Heinle, R.A., Hudson, G.B., Nitao, J.J. and Zucca, J.J., 1996. Trace gas emissions on geological faults as indicators of underground nuclear testing. *Nature*, 382(6591): 528-531.
- Ciotoli, G. et al., 2005. Migration of gas injected into a fault in low-permeability ground. *Quarterly Journal of Engineering Geology and Hydrogeology*, 38: 305-320.
- Cohen, G. et al., 2013. The CO₂-Vadose project: Experimental study and modelling of CO₂ induced leakage and tracers associated in the carbonate vadose zone. *International Journal of Greenhouse Gas Control*, 14: 128-140.
- Guillon, S., Vu, T.M., Pili, E. and Adler, P.M., 2013. Field and numerical determinations of air permeability of unsaturated fractured porous rocks on various scales. *Water Resources Research*, 49: 2801–2811.
- Koudina, N., Garcia, R.G., Thovert, J.F. and Adler, P.M., 1998. Permeability of three-dimensional fracture networks. *Physical Review E*, 57(4): 4466-4479.
- Lineham, T.R. et al., 1996. Gas migration in fractured rock: Results and modelling of a helium gas injection experiment at the Reskajeage Farm Test Site, SW England, United Kingdom. *Journal of Contaminant Hydrology*, 21(1-4): 101-113.
- Patriarche, D., Pili, E., Adler, P.M. and Thovert, J.-F., 2007. Stereological analysis of fractures in the Roselend tunnel and permeability determination. *Water Resources Research*, 43: 09421.
- Pili, E. et al., 2008. Reactive transport and residence times in unsaturated fractured rocks from field-scale experiments. In: M. Barnett, O. and D.B. Kent (Editors), *Developments in Earth and Environmental Sciences*. Elsevier Science B.V., pp. 441-468.
- Pili, E., Perrier, F. and Richon, P., 2004. Dual porosity mechanism for transient groundwater and gas anomalies induced by external forcing. *Earth and Planetary Science Letters*, 227(3-4): 473-480.
- Pili, E., Tisserand, D. and Bureau, S., 2012. Origin, mobility, and temporal evolution of arsenic from a low-contamination catchment in Alpine crystalline rocks. *Journal of Hazardous Materials*.
- Richon, P., Perrier, F., Pili, E. and Sabroux, J.C., 2009. Detectability and significance of 12 hr barometric tide in radon-222 signal, dripwater flow rate, air temperature and carbon dioxide concentration in an underground tunnel. *Geophysical Journal International*, 176(3): 683-694.
- Richon, P. et al., 2005. Spatial and time variations of radon-222 concentration in the atmospheres of a dead-end horizontal tunnel. *Journal of Environmental Radioactivity*, 78(2): 179-198.
- Spangler, L. et al., 2010. A shallow subsurface controlled release facility in Bozeman, Montana, USA, for testing near surface CO₂ detection techniques and transport models. *Environmental Earth Sciences*, 60(2): 227-239.
- Sun, Y. and Carrigan, C., 2012. Modeling Noble Gas Transport and Detection for The Comprehensive Nuclear-Test-Ban Treaty. *Pure and Applied Geophysics*: 1-16.
- Trique, M., Richon, P., Perrier, F., Avouac, J.P. and Sabroux, J.C., 1999. Radon emanation and electric potential variations associated with transient deformation near reservoir lakes. *Nature*, 399(6732): 137-141.
- Wassermann, J. et al., 2011. Characterization and monitoring of the excavation damaged zone in fractured gneisses of the Roselend tunnel, French Alps. *Tectonophysics*, 503(1-2): 155-164.

Tables

Table 1: Summary of the two tracing experiments: total input volume of tracer gases and injection overpressure in chamber C; breakthrough times and dilution factor in the tunnel and the sub-surface borehole SCH1.

Tracing experiment	Overpressure in chamber C (mbar)	Tracer gas	Volume of injected gas (L)	Tunnel Breakthrough time (h)	Dilution factor	Borehole SCH1 Breakthrough time (h)	Dilution factor
TE#1	167	SF ₆	~1100	1.8	4.0×10^1	9.7	1.7×10^4
TE#2	20	³ He	2	<74	6.6×10^2	45 ± 5	2.8×10^6
		SF ₆	4600	11.2	1.3×10^3	-	-
		R134a	2800	11.2	8.0×10^2	-	-

Figures

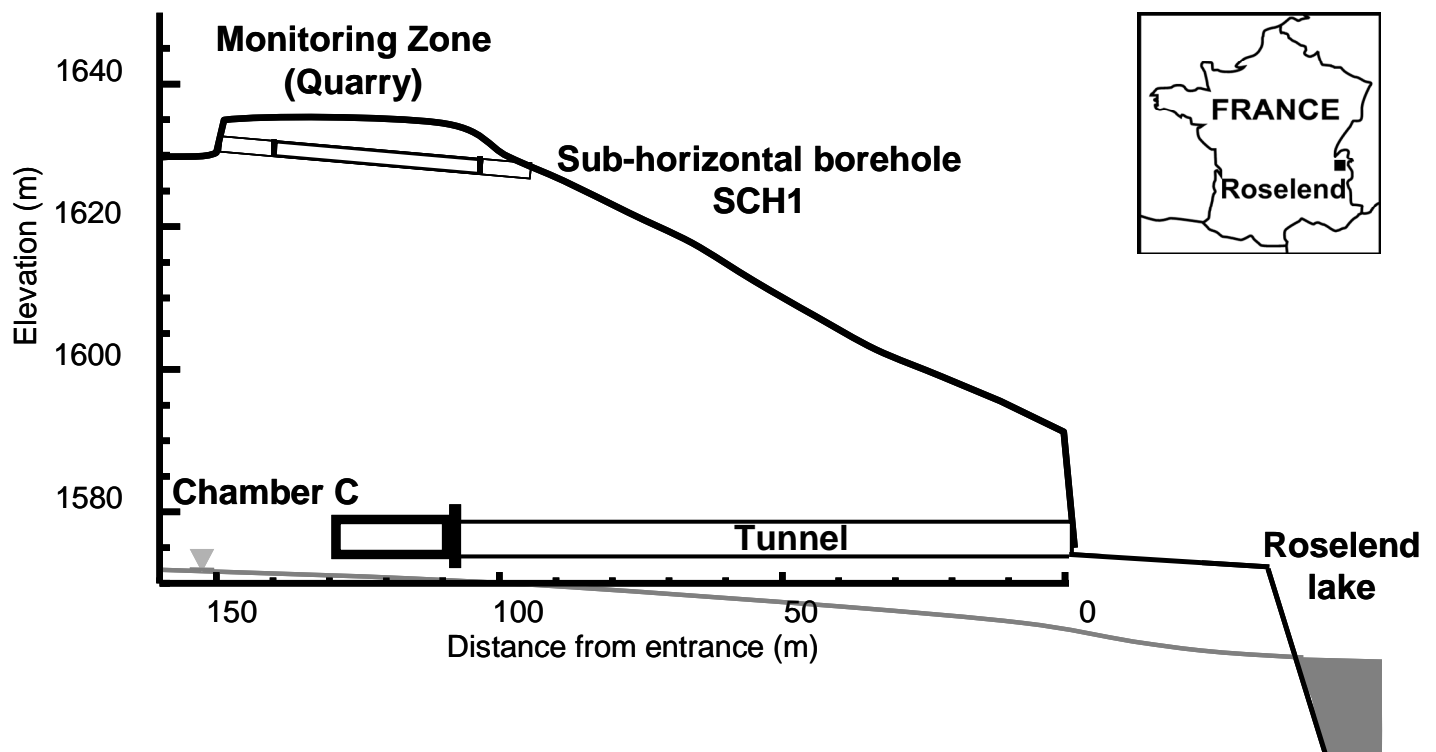


Figure 1: Cross-section of the Roselend Natural Laboratory, with location of the isolated chamber C at 55 m depth, and the sub-horizontal borehole SCH1 from 5 to 10 m depth. Inset: Location of the site in the French Alps.

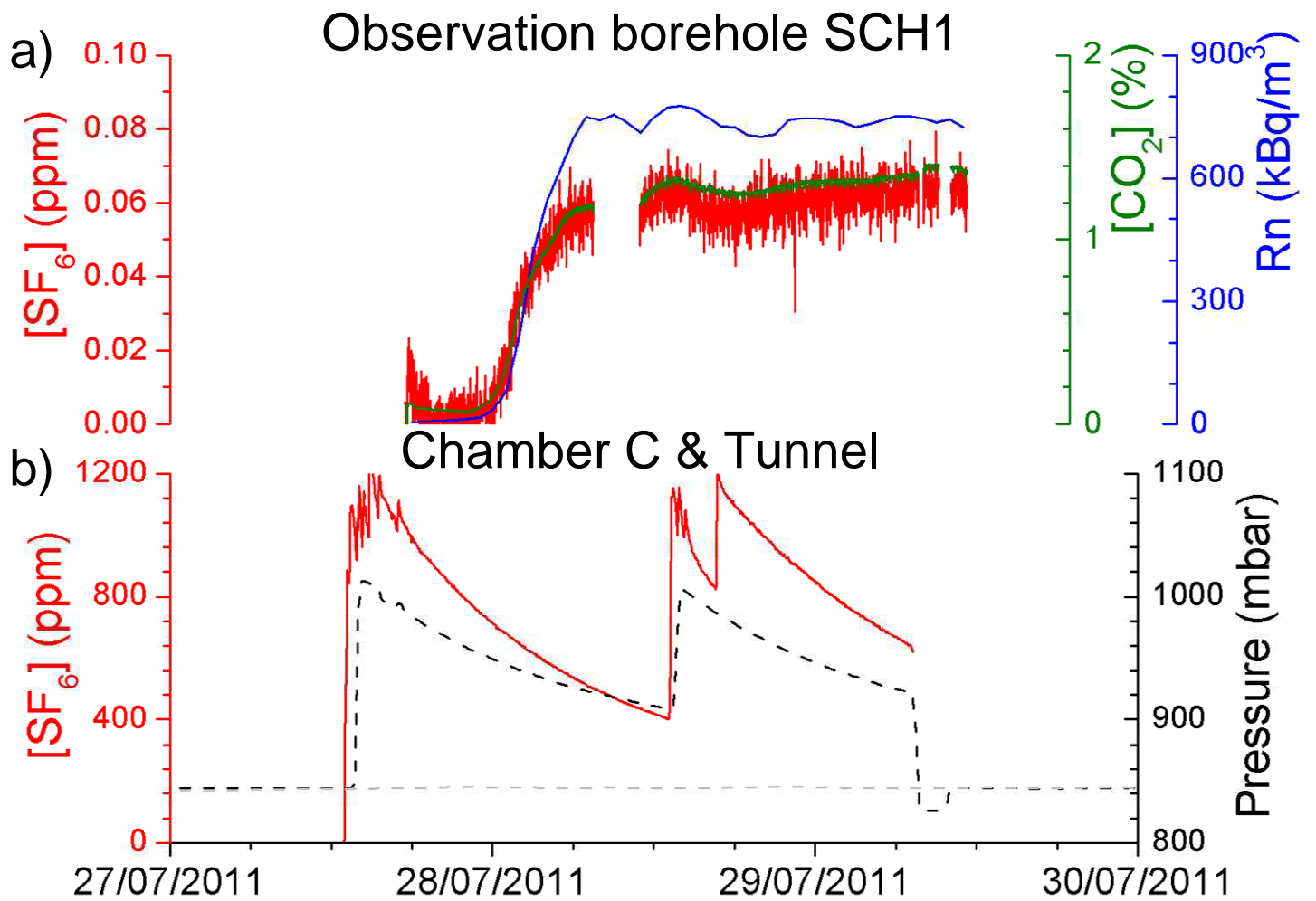


Figure 2: SF_6 during TE#1 between chamber C and the surface. a) SF_6 breakthrough (red) measured in the observation borehole SCH1, associated with increases in CO_2 concentration (green) and ^{222}Rn activity (blue). b) Source term in the chamber C with SF_6 concentration (red), and pressure in the chamber C (dashed black line) and in the tunnel (dashed grey line).

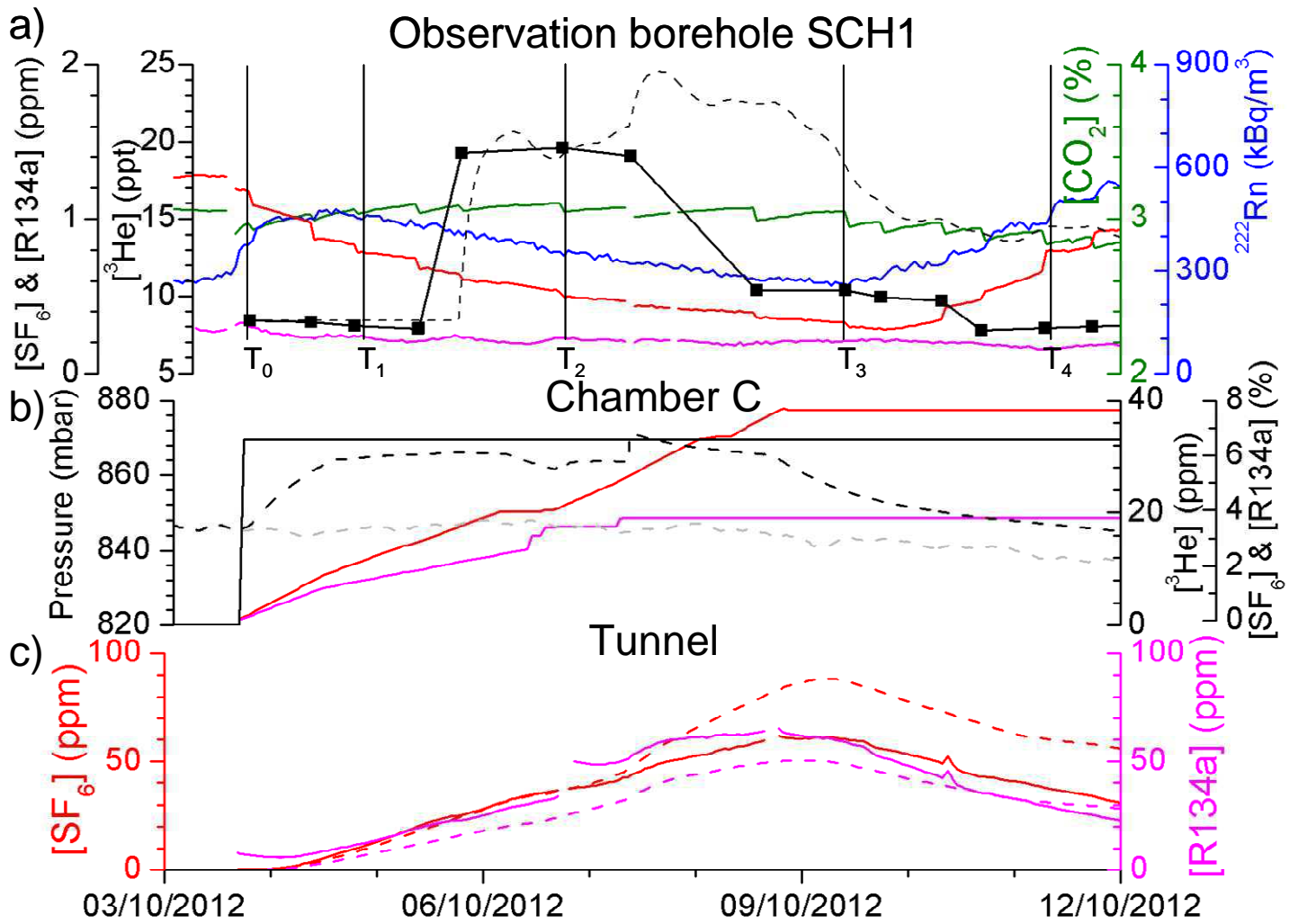


Figure 3: ^3He , SF_6 and R134a during TE#2. a) ^3He breakthrough (black) measured in the observation borehole SCH1, along with SF_6 (red), R134a (pink), CO_2 (green) and ^{222}Rn (blue) concentrations. The black dashed line is ^3He concentration calculated with the 1D advection model presented in Figure 5. T_1 to T_4 refer to this model presented in Figure 5. b) source term in chamber C, with ^3He concentration calculated in chamber C (solid black line), SF_6 (red) and R134a (pink) concentrations in chamber C obtained from the measured injection flow rates, and pressure measured in chamber C (dashed black line) and in the tunnel (dashed grey line). c) SF_6 (solid red line) and R134a (solid pink line) breakthrough curves measured in the tunnel, and calculated (dashed lines) with the 1D advection model presented in Figure 4.

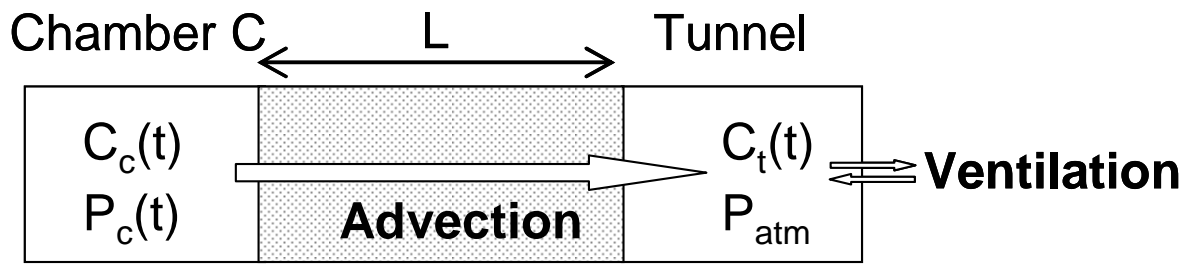


Figure 4: 1D model of gas advection used to explain the measured tracer gases breakthrough curves $C_t(t)$ in the tunnel following injection in the isolated chamber C with concentration $C_c(t)$ and pressure $P_c(t)$. Advection occurs from the chamber to the tunnel through an equivalent porous medium of length L . This source of tracer in the tunnel is balanced by ventilation. Chamber concentrations as well as overpressure are taken as boundary conditions in the model. See text for more details.

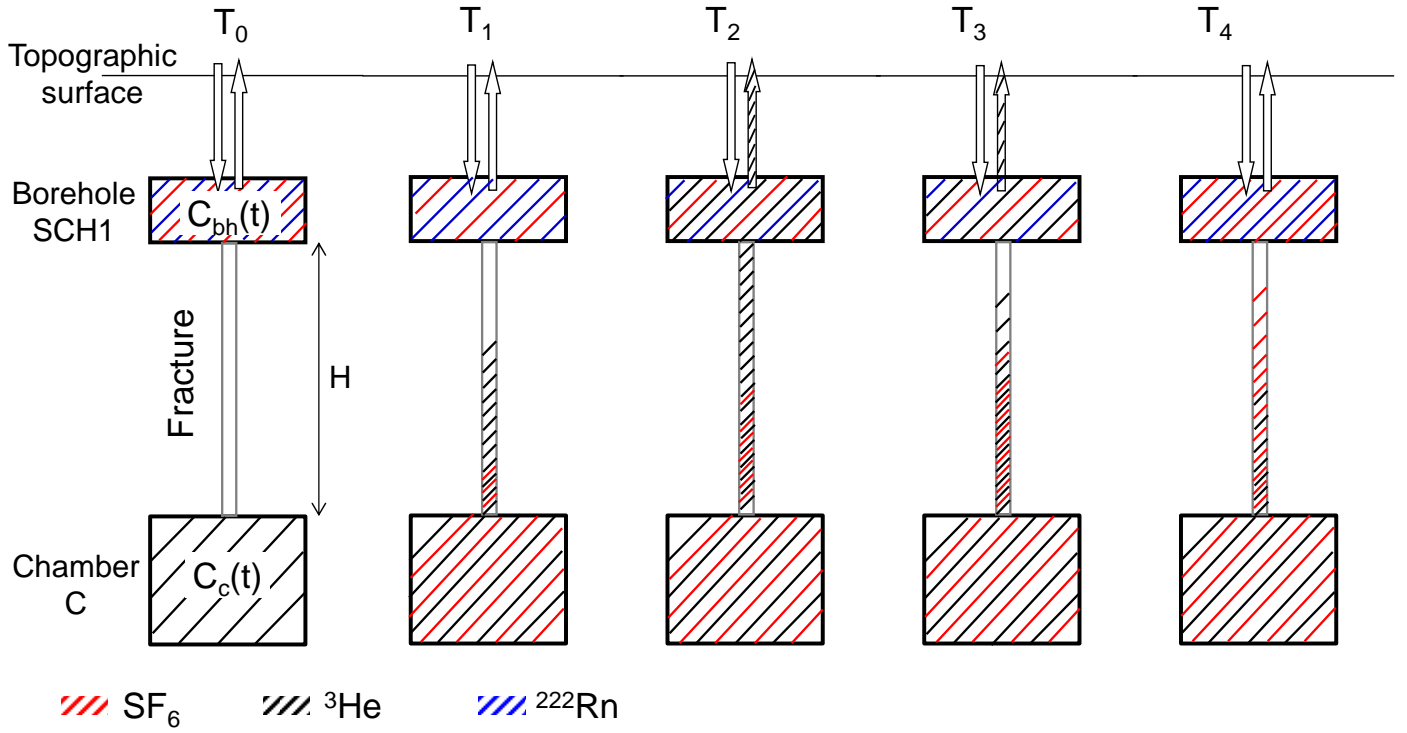


Figure 5: 1D model of gas advection used to explain the measured concentrations of tracer and naturally present gases $C_{bh}(t)$ in borehole SCH1 following injection in the isolated chamber C with concentration $C_c(t)$. The model considers advection from the chamber C to the observation borehole SCH1 through a single fracture, that stands for a percolating fracture network. T_1 to T_4 refers to successive times after tracing experiment TE #2 (Figure 3). See text for details.

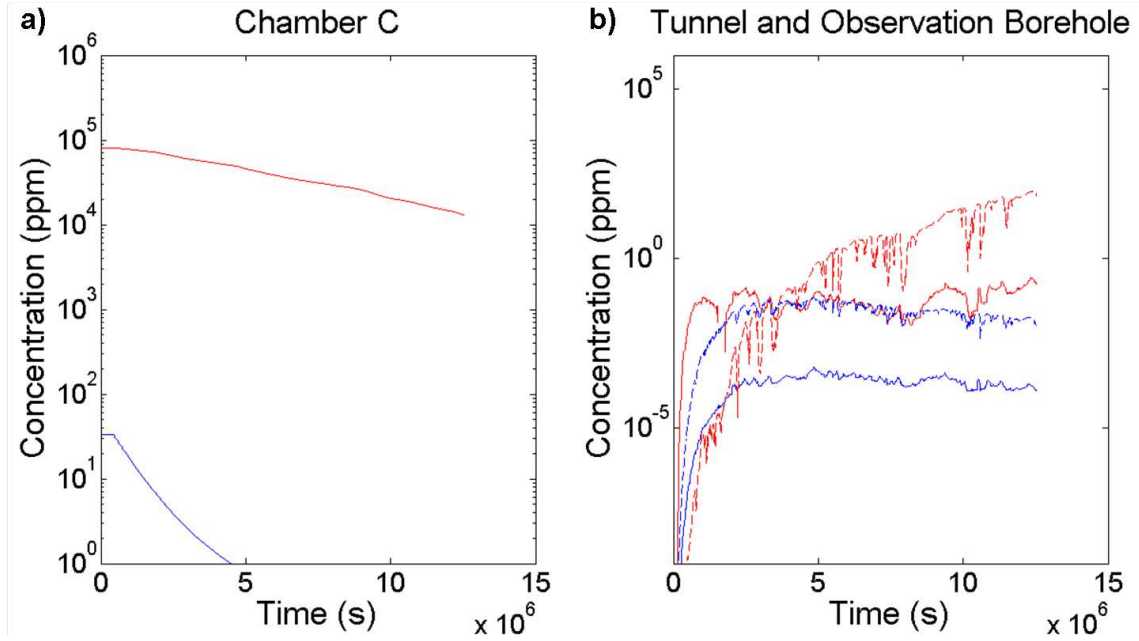


FIGURE 4.8 – Évolutions des concentrations en 3He (bleu) et en SF_6 (rouge) calculées numériquement avec le code NUFT suite au traçage n°2. a) Concentrations dans la chambre C. b) Concentrations dans le tunnel (courbes pleines) et dans le forage d’observation (courbes pointillées). La présence résiduelle de SF_6 dans le forage d’observation suite au traçage n°1 n’est pas prise en compte dans le modèle.

FIGURE 4.8 – Evolution of 3He (blue) and SF_6 (red) concentrations obtained from numerical simulation with the NUFT code for tracing experiment TE#2. a) Concentrations in the chamber C. b) Concentrations in the tunnel (solid lines) and in the observation borehole (dashed lines). The residual presence of SF_6 following tracing experiment TE#1 is not taken into account in the model.

4.2.2.2 Modélisation numérique 3D des expériences de traçage : résultats préliminaires

Pour compléter les interprétations à l’aide de modèles 1D présentées dans l’article ci-dessus, des simulations numériques 3D ont été initiées avec le code NUFT. Le maillage utilisé au Chapitre 2 (Figure 2.1) pour les simulations d’écoulement d’air est repris ici pour les simulations de transport. L’eau est supposée immobile et seul l’écoulement d’air est modélisé. Le modèle 3D utilisé consiste en un milieu poreux de perméabilité 10^{-13} m^2 et de porosité 5 %, valeurs obtenues dans Guillon *et al.* (2013) à l’échelle de 50 m. Les résultats expérimentaux présentés ci-dessus montrent qu’un réseau de fracture percolant est nécessaire pour expliquer la percée rapide et très diluée des traceurs en sub-surface. Un tel réseau est représenté dans le modèle par l’ajout d’une zone verticale à forte perméabilité, 10^{-10} m^2 , et à faible porosité, 0,1 %, entre la chambre d’injection et le forage d’observation (Figure 2.1). Pour le moment, seul le traçage n°2 a fait l’objet de simulations. Les conditions aux limites appliquées pendant la période d’injection sont les concentrations en traceurs et la pression mesurées dans la chambre C. Après la fin de l’injection, les conditions aux limites sont les fluctuations de la pression atmosphérique, et un flux nul à la base du modèle, correspondant à la position de la nappe.

Les résultats de ces simulations numériques, encore préliminaires, sont présentés en Figure 4.8 et 4.9. La Figure 4.8a montre une diminution assez rapide des concentrations en traceurs dans la chambre C. Cette diminution est due à la porosité importante du milieu. Même si peu de données expérimentales sont disponibles quant à l'évolution du terme source sur le long terme, les mesures effectuées dans la chambre C en septembre 2013, 11 mois après le traçage n°2, indiquent que la concentration en SF_6 y était encore de 6 %. La décroissance du terme source apparaît ainsi être lente. Les résultats numériques présentés en Figure 4.8b ne reproduisent pas pour le moment les évolutions des concentrations en 3He et en SF_6 effectivement mesurées dans le tunnel et dans le forage SCH1.

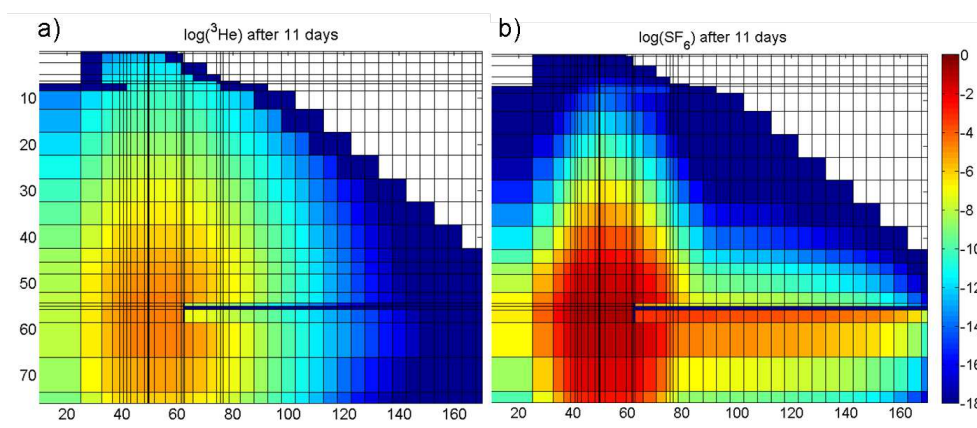


FIGURE 4.9 – Champs de concentration en 3He (a) et en SF_6 (b) calculés numériquement avec le code NUFT 11 jours après le traçage n°2 dans la chambre C. Les concentrations sont représentées en échelle logarithmique.

FIGURE 4.9 – 2D-vertical cross-sections of 3He (a) and SF_6 (b) concentrations, obtained with the NUFT code, 11 days after tracing experiment #2. Concentrations are on a logarithmic scale.

La Figure 4.9 montre une migration assez rapide des traceurs dans le milieu poreux, qui ne se limite pas à la zone verticale à forte perméabilité. L' 3He migre et envahit plus rapidement le milieu poreux, en accord avec son coefficient de diffusion plus élevé que celui du SF_6 .

Les simulations numériques devront être reprises pour pouvoir reproduire au mieux les données expérimentales et pour être intégrées dans le projet d'article présenté ci-dessus. Je souhaite encore valider le modèle quant à sa capacité à représenter la ventilation naturelle du tunnel. Le gradient altitudinal de la pression atmosphérique, avec une baisse de 6 mbar entre l'altitude du tunnel et celle de la carrière, doit également être ajouté dans le modèle. Enfin, le SF_6 résiduel issu du traçage n°1 doit être pris en compte dans les conditions initiales.

4.2.2.3 Retour sur les structures à l'origine de la percée rapide des traceurs

L'interprétation des percées rapides des traceurs par la migration dans une zone de fracture qui relie préférentiellement la chambre d'injection avec le forage de sub-surface SCH1 est corroboré par les observations des carottes de roches et l'imagerie de puits. En

effet, de nombreuses fractures recoupent l'intervalle du forage isolé par les obturateurs. Une zone de fracture ouverte, présentée en Figure 4.10, est située à 28 m de l'extrémité supérieure du forage, à la verticale de la chambre d'injection. Sans que cette observation dans le forage SCH1 puisse être directement liée avec une fracture relevée en surface dans les zones où la roche est à l'affleurement ou dans la chambre, notre interprétation est que la migration rapide de la chambre vers le forage SCH1 passe par cette zone de fracture, qui correspondrait à un réseau de fractures percolant. Cette connexion locale s'inscrit parfaitement dans la connexion à plus grande échelle déduite du traçage salin de la carrière vers le fond du tunnel en 2003 (Pili *et al.*, 2008a). Elle est aussi cohérente avec les observations et interprétations faites à partir des traçages aqueux entre les forages de la paroi de la chambre (Section 4.1).

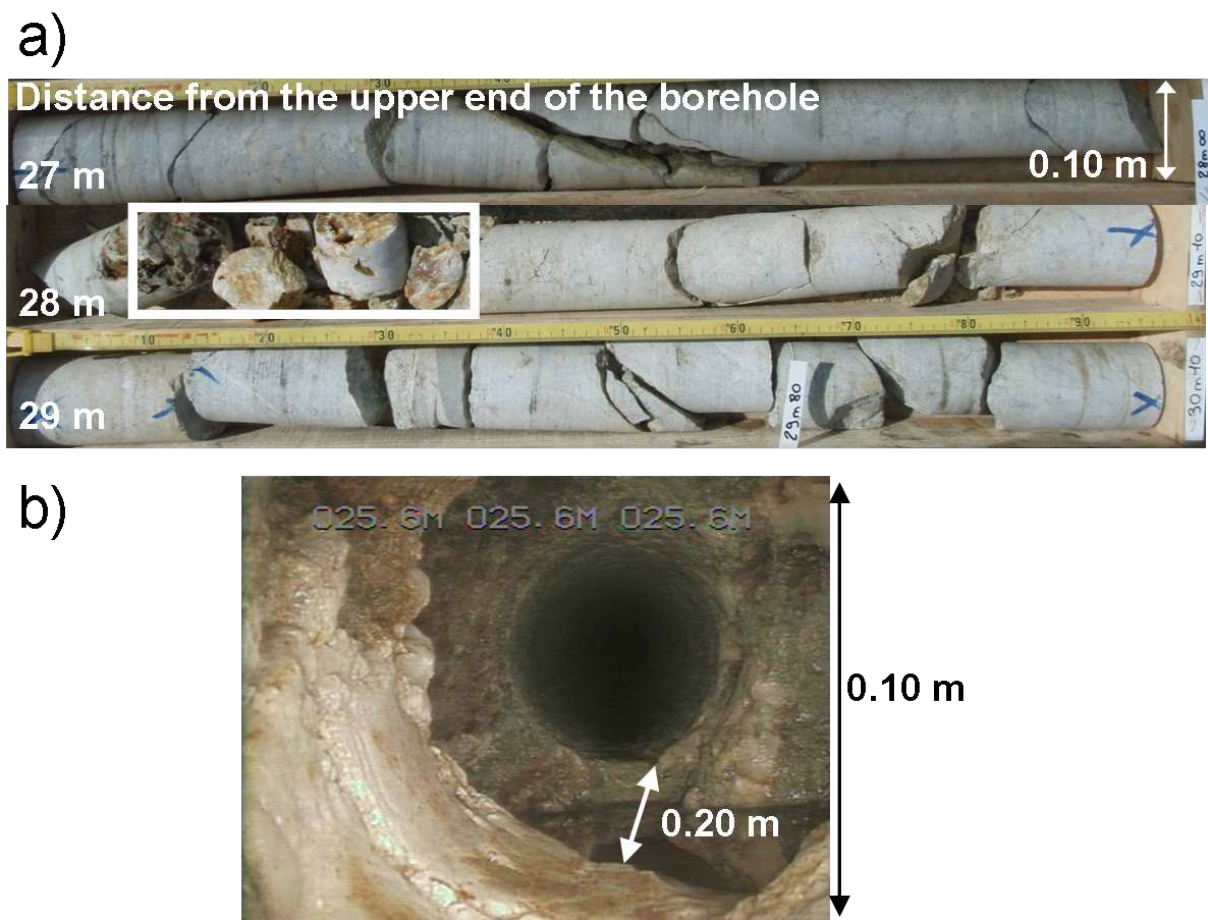


FIGURE 4.10 – Zone de fracture majeure observée dans le forage SCH1 à 28 m de l'extrémité supérieure. Veine de quartz et cavités observées sur les carottes de roche (a, rectangle blanc) et *in situ* par caméra de puits (b).

FIGURE 4.10 – Large fracture zone observed in the borehole SCH1 at a distance of 28 m from its upper end. Quartz vein and cavities observed on cores (a, white rectangle) and *in situ* using borehole televiewer (b).

4.2.3 Évolutions des traceurs sur le long terme

Si la restitution des traceurs à court terme a été d'une approche aisée, l'interprétation du suivi des concentrations en traceurs dans le forage SCH1 sur le long terme s'avère complexe. L'étude de la dynamique des gaz naturellement présents dans les forages de sub-surface a déjà montré des fluctuations importantes, contrôlées par les fluctuations de pression atmosphérique et les événements d'infiltration (Chapitre 3). La perméabilité de la roche autour du forage SCH1 est élevée, et la profondeur du forage est seulement de quelques mètres. Les différences de pression entre le forage et l'atmosphère sont donc très faibles et ne contrôlent pas l'évolution des concentrations en gaz, contrairement à ce qui a été montré en profondeur dans la chambre et le tunnel. En sub-surface dans le forage SCH1, le contrôle est exercé essentiellement par les mouvements d'eau.

4.2.3.1 Le traceur envahit progressivement la roche sous l'effet de la surpression dans la chambre

Pendant l'année qui a suivi le traçage n°1, l'acquisition des données de concentration en SF_6 et de hauteur d'eau dans le forage SCH1 n'a pas été continue (Figure 4.11), en raison de dysfonctionnements des analyseurs photo-acoustiques et des obturateurs gonflables. Une arrivée rapide du SF_6 , simultanément avec une augmentation des concentrations en CO_2 et ^{222}Rn ayant été observée suite à l'injection en surpression dans la chambre, la chambre a été mise sous pression à 200 mbar par injection d'air de façon répétée pendant les dix mois qui ont suivi l'injection (Figure 4.11). Comme représenté dans la Figure 4.11, aucun lien temporel systématique entre les injections d'air en surpression dans la chambre et l'augmentation de la concentration en SF_6 dans le forage SCH1 n'a pu être démontré, même si certaines injections d'air sont suivies d'augmentations de la concentration en SF_6 .

Fin octobre 2011, trois mois après le traçage °1, la concentration maximale de 27 ppm a été atteinte dix jours après une injection d'air dans la chambre, qui semble à l'origine du pic de concentration. Cette concentration importante correspond à une dilution d'un facteur seulement 37 (contre 10^4 lors de la première arrivée rapide). Ce pic maximum fait suite à trois injections d'air à 200 mbar de surpression dans la chambre (Figure 4.11) d'une durée totale de 133 h. Un gradient de pression élevé a donc été maintenu dans la chambre pendant une durée importante, ce qui a contribué à faire migrer rapidement le SF_6 vers la surface, non seulement dans les fractures mais aussi dans les zones moins perméables (matrice et réseaux de fracture du second ordre).

Au début du mois de mars 2012, une augmentation de la concentration en SF_6 dans le forage SCH1 a été mesurée (Figure 4.11). Cette augmentation ne fait pas suite à une injection d'air. Elle est observée quasi-simultanément avec une augmentation du niveau d'eau dans le forage SCH1, qui indique un épisode d'infiltration d'eau important. De la même manière que les mouvements d'eau, infiltration ou montée de la nappe, sont à l'origine des anomalies en gaz dans le tunnel (Chapitre 3), des augmentations de concentration en SF_6 dans le forage SCH1 sont créées par les événements d'infiltration d'eau depuis la surface.

Au milieu du mois de janvier 2012, un pic de SF_6 a été mesuré, qui fait suite à la fois à une injection d'air dans la chambre C et à une augmentation du niveau d'eau dans

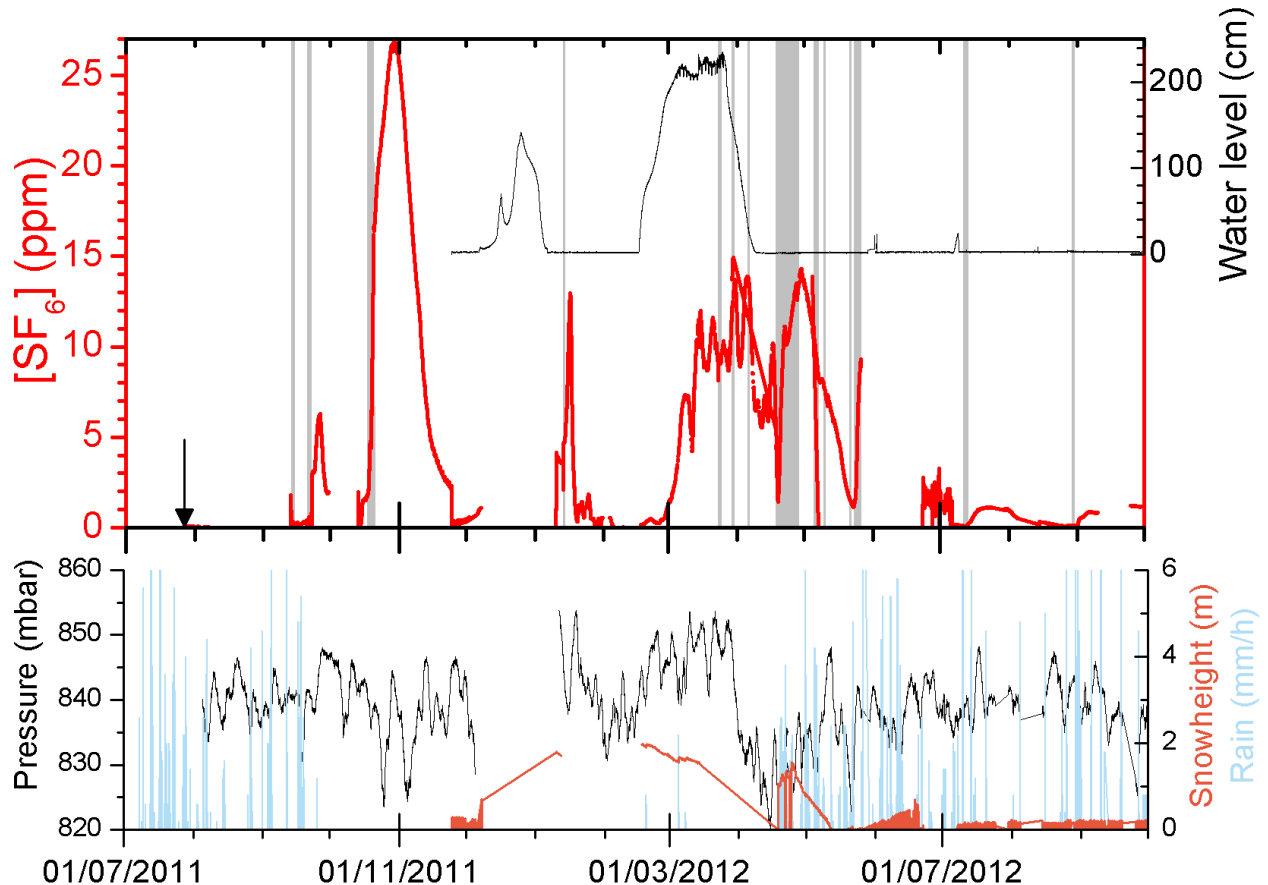


FIGURE 4.11 – Haut : évolution de la concentration en SF_6 (rouge) dans le forage SCH1 dans les mois qui suivent le traçage n°1 dans la chambre (flèche noire, 27 juillet 2011). Les barres verticales grises indiquent les injections d'air à 200 mbar dans la chambre C. La hauteur d'eau à l'extrémité inférieure du forage SCH1 est indiquée en noir. Bas : pression atmosphérique (noir), précipitations (bleu) et hauteur de neige (orange) mesurées dans la carrière.

FIGURE 4.11 – Top : SF_6 concentration (red) measured in borehole SCH1 in the months following tracing experiment TE#1 (black arrow, 7/27/2011). Vertical grey lines indicate air injection at 200 mbar in the chamber C. Water level measured at the lower end of the borehole SCH1 is represented by the black line. Bottom : atmospheric pressure (black), rain (blue) and snow height (orange) measured in the quarry.

le forage SCH1, et donc à un événement d'infiltration. Les deux effets peuvent ainsi se combiner.

Un an après le traçage n°1, le traceur SF_6 a envahi tout le milieu jusqu'à la surface et un état stationnaire semble être atteint, avec une concentration moyenne de SF_6 entre 0,5 et 2 ppm dans le forage SCH1 et dans la chambre (Figure 3 de l'article présenté en Section 3.3.1), soit une dilution moyenne d'un facteur 1 000. Un an après le traçage n°2 réalisé en octobre 2012, en l'absence d'injections d'air dans la chambre, un tel état n'a pas été atteint pour les concentrations en traceurs SF_6 et R134a. Les injections d'air dans la chambre ont donc entraîné une migration progressive des traceurs dans tout le milieu. Les mouvements d'eau s'ajoutent à cela pour faire migrer les gaz. De tels mouvements d'eau pourraient ralentir l'invasion du milieu par le SF_6 depuis la chambre,

faussant les observations d'arrivée de SF_6 dans le forage SCH1.

4.2.3.2 Le traceur migre lentement sous l'effet des gradients de pression naturels

Durant les 12 mois qui ont suivi le traçage n°2 réalisé en octobre 2012, la chambre C est restée complètement isolée. Après une surpression initiale de 20 mbar maintenue pendant 215 h dans la chambre, les traceurs 3He , SF_6 et R134a ont été soumis uniquement aux gradients de pression et autres forçages naturels. L'évolution des concentrations en traceurs, SF_6 , 3He et R134a, et en gaz naturellement présents, CO_2 et ^{222}Rn , a été suivie pendant un an dans le forage SCH1. Les résultats sont présentés en Figure 4.12, avec les forçages naturels qui ont montré une influence sur la migration des gaz, pression atmosphérique, précipitations et hauteur du manteau neigeux.

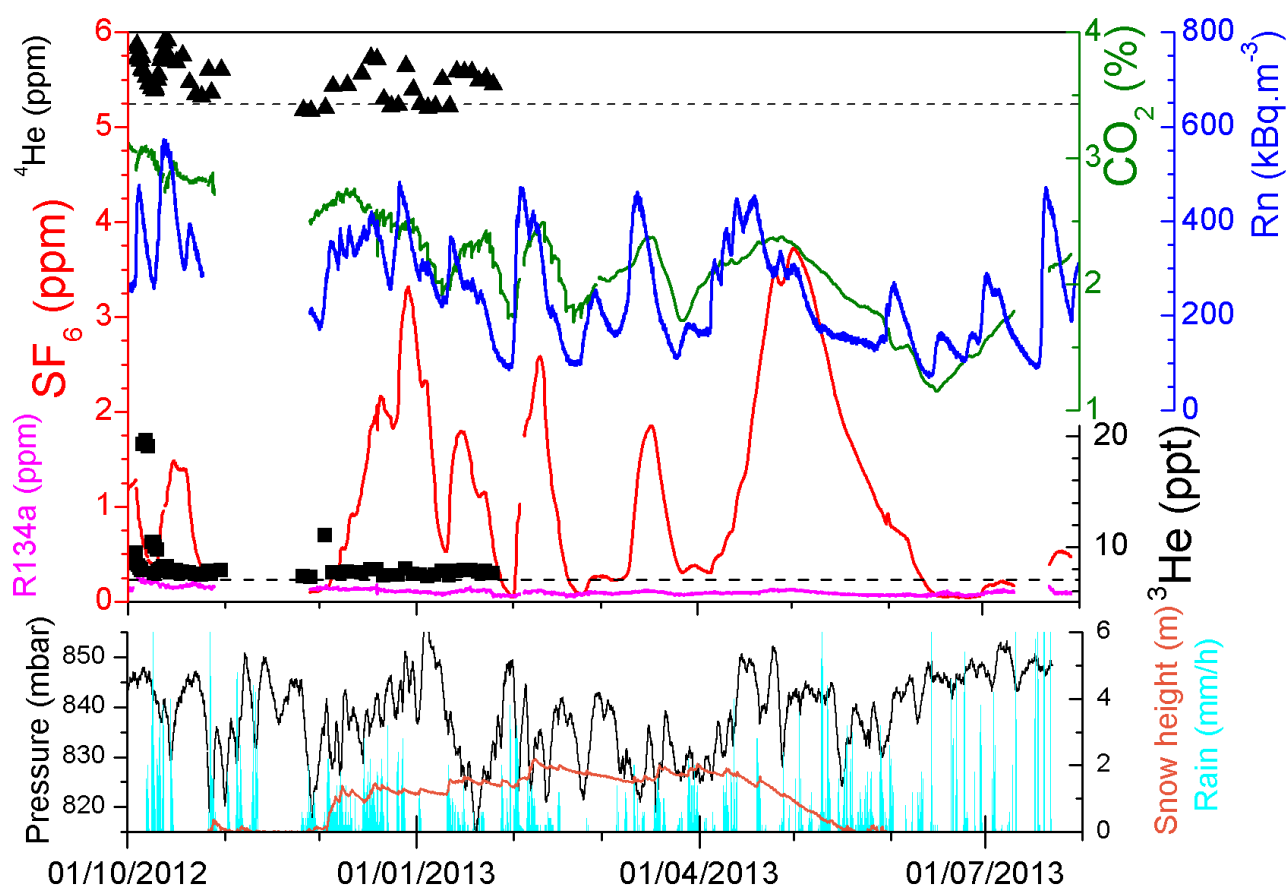


FIGURE 4.12 – Haut : évolutions des concentrations en SF_6 (rouge), R134a (rose), 3He (carrés noirs), 4He (triangles noirs), CO_2 (vert), et ^{222}Rn (bleu) dans le forage SCH1 dans les mois qui suivent le traçage n°2. Bas : pression atmosphérique (noir), précipitations (bleu) et hauteur de neige (orange) mesurées dans la carrière.

FIGURE 4.12 – Top : Concentrations of SF_6 (red), R134a (pink), 3He (black squares), 4He (black triangles), CO_2 (green), et ^{222}Rn (blue) measured in borehole SCH1 in the months following tracing experiment TE#2. Bottom : atmospheric pressure (black), rain (blue) and snow height (orange) measured in the quarry.

Le suivi de l'hélium-3 a été réalisé pendant les 4 mois qui ont suivi son injection dans

la chambre. Les prélèvements ont ensuite été stoppés car le temps machine alloué pour la mesure était consommé.

Au début du mois de novembre 2012, le forage SCH1 a été ouvert à l'atmosphère à cause d'une fuite sur le tube de gonflage de l'obturateur, entraînant une perte de quinze jours de données (Figure 4.12).

En septembre 2013, un an après le traçage n°2, malgré une limite de détection de seulement 0,1 ppm pour le R134a due à la présence d'interférents pour la mesure photo-acoustique (cf. Annexe E), aucune percée de R134a n'a pu être observée, ni dans le forage SCH1 (Figure 4.12) ni dans les forages SC (données non représentées ici). La concentration en SF_6 mesurée dans le forage SCH1 ne montre pas non plus d'augmentation par rapport à l'état stationnaire de quelques ppm atteint après le traçage n°1 (Figure 4.12). Le SF_6 injecté à forte concentration lors du traçage n°2 ne semble pas être arrivé en surface.

Les prélèvements réalisés dans la chambre C quatre mois après l'injection n°2 montrent que les concentrations en SF_6 et R134a dans la chambre d'injection sont toujours de près de 2 %, soit encore un quart de la concentration initialement injectée. Ce terme source constitue un réservoir de traceurs encore important pour leur migration dans le milieu, en faveur de la poursuite du suivi d'une éventuelle arrivée des traceurs en sub-surface.

Si on reprend le facteur de dilution de 1 000 obtenu pour l'évolution à long terme suite au traçage n°, on s'attend à une concentration finale de plusieurs centaines voire milliers de ppm en SF_6 et en R134a dans le forage SCH1. Ceci n'a pas encore été observé au 20 septembre 2013. La percée des traceurs SF_6 et R134a injectés lors du traçage n°2 en octobre 2012 n'a donc pas encore été mesurée. Le SF_6 mesuré dans le forage SCH1 est ainsi celui issu du traçage n°1.

Contrairement au traçage n°1 où des injections d'air à 200 mbar de surpression dans la chambre avaient accéléré la migration du traceur dans la roche, la surpression dans la chambre n'a jamais dépassé 20 mbar lors du traçage n°2. La migration des gaz, 3He , SF_6 et R134a, injectés lors du traçage n°2 se fait uniquement sous l'effet des fluctuations de pression atmosphérique.

Les fluctuations mesurées de la concentration en SF_6 dans le forage SCH1 sont interprétées comme résultant des forçages naturels (Figure 4.12). Cette dynamique a déjà fait l'objet d'une interprétation au Chapitre 3, qui est rappelée ici. Les valeurs de concentration en SF_6 montrent des augmentations rapides et transitoires entre 2 et 4 ppm, sur une ligne de base faible, entre 0 et 0,2 ppm. La concentration en CO_2 présente des augmentations simultanées (Figure 4.12). Ces augmentations sont interprétées par des épisodes d'advection d'air, poussé par l'infiltration de lames d'eau lors de la fonte du manteau neigeux. La présence du manteau neigeux en surface semble par ailleurs agir comme un couvercle, qui piège et accumule le SF_6 en sub-surface, et conduit à des concentrations assez élevées. Quand ce couvercle disparaît, la concentration en SF_6 diminue car le forage SCH1 devient connecté avec l'atmosphère et ventilé à travers les 5 à 10 m de roche qui le recouvrent.

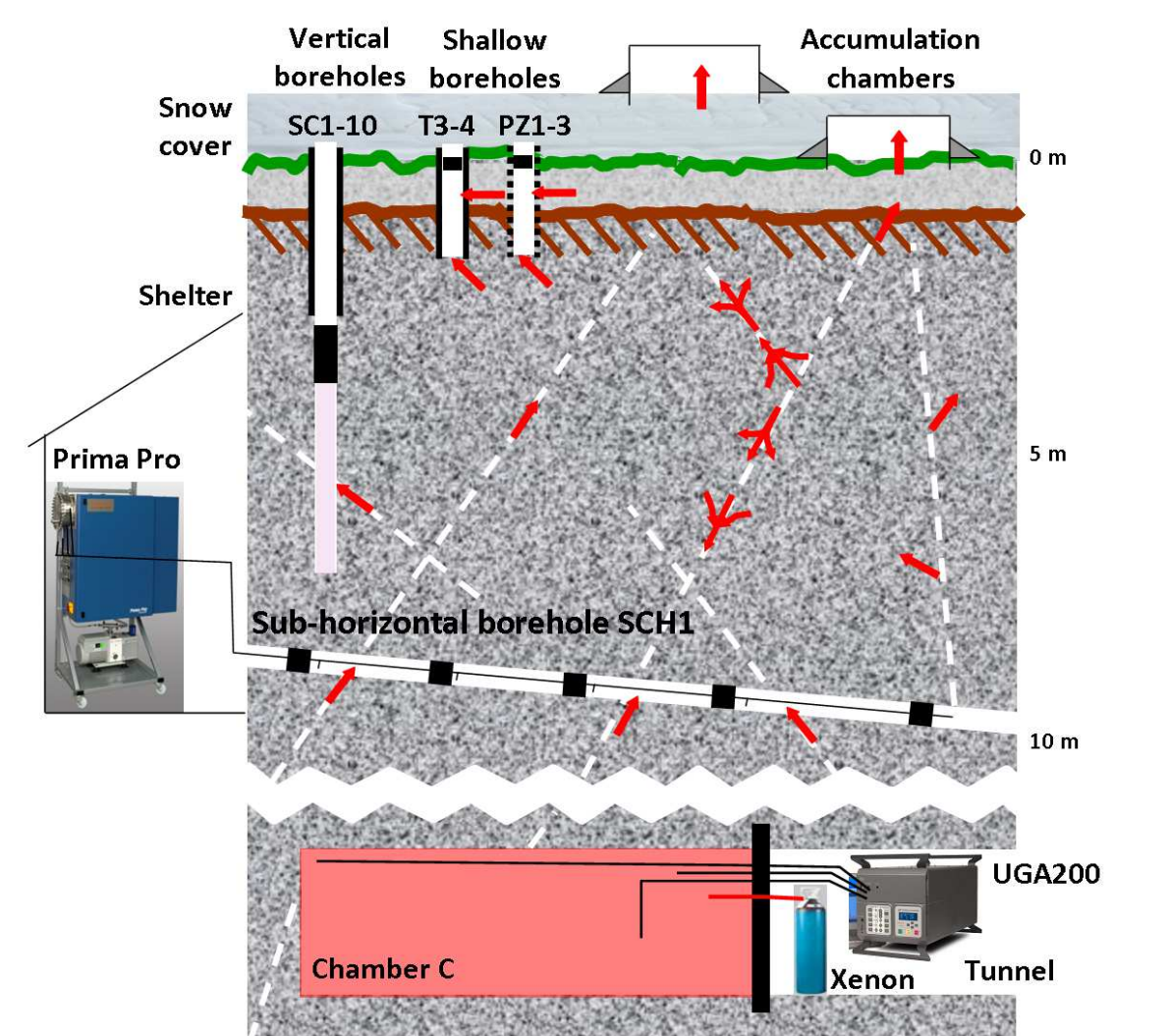


FIGURE 4.13 – Schéma des dispositifs d'injection et de suivi du xénon prévus pour le traçage n°3 entre la chambre et la surface. Le spectromètre de masse Prima Pro permet d'analyser les concentrations en xénon dans les 4 intervalles de mesure délimités par un obturateur multiple dans le forage SCH1. Le spectromètre de masse UGA 200 permet de mesurer le terme source dans la chambre C. Modifié d'après E. Pili (com. pers.).

FIGURE 4.13 – Diagram of xenon injection and monitoring systems for tracing experiment TE₃ between chamber C and the surface. Prima Pro mass spectrometer measures xenon concentrations in the 4 chambers delimited by packers in the borehole SCH1. UGA 200 mass spectrometer measures the source term in chamber C. Modified from E. Pili (pers. com.).

4.2.4 Dimensionnement d'un traçage au xénon stable

Les travaux réalisés pendant cette thèse trouveront leur aboutissement dans la réalisation d'un traçage n°3 avec des isotopes stables du xénon. Les dispositifs pour l'injection du traceur dans la chambre C et pour le suivi dans la chambre et en surface sont représentés en Figure 4.13. Les traçages n°1 et 2 ont montré l'existence d'au moins un réseau de fractures percolant entre la chambre d'injection C et le forage d'observation SCH1. La détermination des contributions respectives des différentes zones de fractures et de

matrice observées dans le forage SCH1 sera réalisée grâce à la mise en place d'un obturateur multi-chambres (Geopro) dans le forage SCH1, afin d'isoler quatre intervalles de mesure (Figure 4.13). L'étude de la migration des gaz à l'interface géosphère-atmosphère sera permise par un suivi dans les forages courts et à la surface du sol. L'analyse continue du xénon dans les différents forages, et en particulier dans le forage sub-horizontale SCH1, sera réalisée grâce à un spectromètre de masse à secteur magnétique, Prima Pro (Thermo Scientific), dont le fonctionnement est décrit en Annexe E. Cet appareil, initialement dédié à la surveillance des processus industriels, est robuste et autonome et permet de mesurer les principaux isotopes stables du xénon dans l'atmosphère. Le développement des protocoles analytiques pour la mesure du xénon et la mise en œuvre de ce traçage est réalisé dans le cadre du post-doctorat de Claire Gréau, qui prend ainsi le relais de ce travail au sein du projet ROSELEND-Gas.

Alors que le traçage n°2 avec l'hélium-3, le SF_6 et le R134a a permis de valider l'utilisation et la mesure d'un gaz rare et de préciser l'influence de la pression d'injection sur la migration des traceurs, le traçage n°3 aura comme traceur le xénon, qui est l'espèce qui nous intéresse directement pour la détection des essais nucléaires. Il sera réalisé avec une surpression d'injection faible, entre 5 et 10 mbar, pour limiter le rôle de l'advection dans la migration du traceur et maximiser ainsi le rôle du pompage barométrique. Le nouveau dispositif de suivi permettra également de préciser l'hétérogénéité spatiale de la migration dans les différents réseaux de fractures et dans la matrice.

Les résultats obtenus lors des traçages n°1 et 2 permettent de préparer ce traçage au xénon stable, dimensionner les quantités de gaz à injecter, et prévoir le débit et la durée d'injection pour que la surpression dans la chambre reste inférieure à 10 mbar. La concentration en xénon total C_{SCH1} prévue lors de l'arrivée du traceur dans le forage d'observation peut être estimée à partir du facteur de dilution d de $2,8 \cdot 10^6$ obtenu lors du traçage n°2 avec l'hélium-3 et une surpression inférieure à 20 mbar, et par la relation :

$$C_{SCH1} = C_{atm} + C_{cham} \times \frac{1}{d} = C_{atm} + \frac{V_{inj}}{V_{cham}} \times \frac{1}{d} \quad (4.1)$$

où C_{atm} est la concentration en xénon total dans l'atmosphère (87 ppb), égale à la ligne de base dans le forage SCH1, C_{cham} la concentration en xénon dans la chambre C suite au traçage n°3, V_{inj} le volume de xénon pur injecté dans la chambre C (en m^3) et V_{cham} le volume de la chambre C (en m^3).

La limite de détection du spectromètre de masse Prima Pro pour la mesure du xénon est de 10 ppb. Pour garantir la détection de la sortie du traceur, on considère que la concentration à la percée, C_{SCH1} , est le double de la concentration de la ligne de base C_{atm} . D'après l'Équation 4.1, il est pour cela nécessaire d'injecter $14,6 m^3$ de xénon pur dans la chambre. Lors de l'injection du xénon, l'objectif est que la pression dans la chambre n'augmente pas de plus de 10 mbar. Étant donnée la perméabilité de $8 \cdot 10^{-15} m^2$ déterminée par test d'injection pneumatique dans la chambre C, le débit d'injection du xénon ne doit pas excéder 1 L/min. La durée d'injection de $14,6 m^3$ de xénon pur à débit constant de 1 L/min sera alors de 10 jours.

Une étude similaire montre qu'il n'est pas envisageable de réaliser un traçage avec un seul isotope stable purifié du xénon, car le coût d'achat du traceur serait prohibitif. Par exemple, avec une limite de détection de 5 à 10 ppb sur le ^{124}Xe , isotope le moins abondant, il faudrait injecter 550 à 1 100 L de ^{124}Xe dans la chambre C pour pouvoir le

détecter avec le spectromètre de masse Prima Pro dans le forage SCH1. Or le prix du ^{124}Xe est de 25 000 €/L, ce qui donnerait un coût total de plusieurs millions d'euros pour le traceur.

Le traçage n°2 à l'hélium-3 entre la chambre C et le forage d'observation SCH1 avec une surpression de 20 mbar a donné un temps de percée de 45 ± 5 h. Pour une injection de xénon avec une surpression inférieure à 10 mbar, soit 2 fois plus faible, on s'attend à un temps de percée 2 fois plus long, soit 90 h (environ 4 jours), mais avec un effet plus marqué des fluctuations de la pression atmosphérique. La sortie du traceur pourrait ainsi être ralentie par une augmentation de la pression atmosphérique.

4.3 Conclusion sur les différents mécanismes de transport

Les résultats obtenus lors des deux expériences de traçage présentées ci-dessus ont permis d'identifier certains mécanismes de transport des gaz dans les milieux poreux fracturés. Les lois physiques qui régissent ces processus ainsi que les paramètres mis en jeu ont été détaillés dans la Section 1.1. Ici, les conditions auxquelles chaque mécanisme de transport répond, et ses conséquences en termes de dilution et de temps de parcours sont récapitulées.

Advection

Les sorties rapides des traceurs par les fractures sont associées à l'advection sous l'effet de la surpression à l'injection. Une surpression d'une dizaine de mbar à 50 m de profondeur suffit à faire migrer les gaz en seulement 50 h dans un milieu granitique fracturé de perméabilité équivalente 10^{-13} m^2 , dans un réseau de fractures percolant. Ces fractures sont peu nombreuses, et ne transportent que de faibles quantités de traceurs. En conséquence, les dilutions des traceurs à leur arrivée en surface sont très fortes, d'un facteur 10^4 à 10^6 .

Une surpression plus élevée de 200 mbar à 50 m de profondeur, si elle est maintenue pendant plusieurs dizaines d'heures, entraîne la migration des traceurs dans tout le réseau des fractures, même les moins perméables. La totalité de la roche est alors envahie, et la dilution des traceurs devient faible, d'un facteur 40 à 1 000.

Pompage barométrique

Les sorties plus tardives des traceurs sous l'effet du pompage barométrique n'ont pour le moment pas été observées au Laboratoire Naturel de Roselend. La migration des gaz dans les fractures et dans la matrice sous l'effet des fluctuations de pression atmosphérique apparaît donc comme très lente, avec plus d'un an nécessaire pour parcourir une distance de 50 m. Les mouvements descendants d'eau dans les fractures pourraient participer à ralentir cette ascension des gaz vers la surface. La persistance de concentrations élevées en traceurs dans et autour de la chambre plusieurs mois après

le traçage n°2 est en faveur de la poursuite du suivi des traceurs R134a et SF_6 dans le forage d'observation, pour essayer de mesurer une percée plus tardive des traceurs.

Diffusion

La migration des traceurs par diffusion pure à l'échelle de 50 m met en jeu des échelles de temps extrêmement longues. En utilisant les relations rappelées en Section 1.1, les temps de percée des traceurs 3He et SF_6 par diffusion sont estimés de l'ordre de 20 à 1000 ans pour une distance de 50 m et une porosité comprise entre 1 et 4 %.

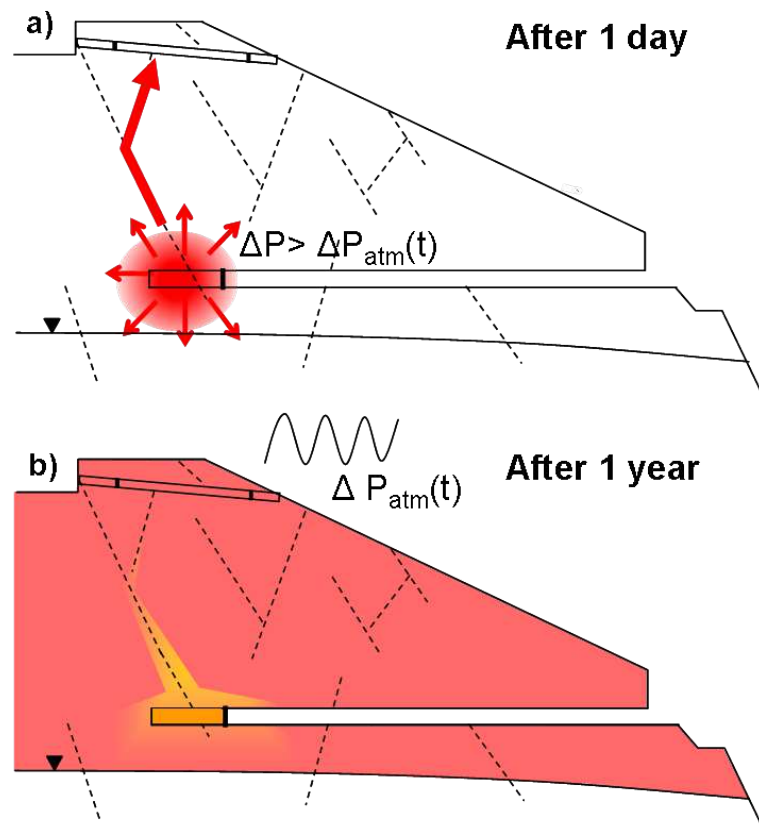


FIGURE 4.14 – Schéma récapitulatif des moteurs et mécanismes de migration lors des traçages. a) A court terme, l'advection rapide dans les fractures est contrôlée par la surpression à l'injection. b) A long terme, le pompage barométrique sous l'effet des variations de la pression atmosphérique prend le relai.

FIGURE 4.14 – Summary of the driving forces and mechanisms during tracing experiments. a) At short time scale, rapid advection in fractures is controlled by the injection overpressure. b) At long time scale, barometric pumping in response to atmospheric pressure fluctuations becomes the main driving force.

Les deux expériences de traçage réalisées entre la chambre et la surface en 2011 puis en 2012 ont permis d'établir et de valider un mode opératoire. L'injection de traceurs dans la chambre et la surpression créée sont maîtrisées. Les protocoles et les moyens analytiques pour la détection et la mesure d'une variété d'espèces gazeuses sont opérationnels. Les gaz sont mesurés à la fois dans le tunnel, dans la chambre, dans les forages de sub-surface et en surface.

Les temps de percée et les dilutions des traceurs en sub-surface, pour une distance de migration de 50 m, sont essentiellement contrôlés par la surpression lors de l'injection. Pour une surpression de 167 mbar dans la chambre, le traceur est détecté au bout de 10 h avec une dilution d'environ 20 000 ; pour une surpression de 20 mbar, le traceur est détecté au bout de 50 h avec une dilution d'environ 3 millions. Ces résultats permettent de dimensionner toute nouvelle expérience de traçage. En particulier, la quantité de xénon à injecter dans la chambre C devant permettre de mesurer une restitution dans le forage SCH1 a pu être estimée.

Les deux mécanismes de transport des gaz lors d'une expérience de traçage sont représentés en Figure 4.14. A court terme, les gaz migrent dans les fractures sous l'effet de la surpression d'injection. C'est surtout l'intensité mais aussi la durée de cette surpression qui contrôle la vitesse de migration et les quantités de gaz transportées. Pour une surpression de quelques mbar, les quantités de gaz transportées sont apparues très faibles. A long terme, les fluctuations de la pression atmosphérique entraînent la migration lente de faibles quantités de gaz dans les roches. L'observation du transport des gaz par pompage barométrique demande ainsi de suivre les traceurs pendant plusieurs mois voire plusieurs années, car c'est un processus lent, mais inéluctable. L'arrivée des traceurs en surface, même si elle est très tardive, devrait finalement être observée. Dans le cas où le traceur ne serait pas observé en surface, un forage vertical pourrait permettre de rendre compte de la position du front de migration du traceur dans la zone non saturée.

Chapitre 5

Conclusion générale et perspectives

Au cours de ces travaux, les mécanismes de migration des gaz dans les milieux géologiques ont été étudiés, identifiés et quantifiés. Le Laboratoire Naturel de Roselend s'est confirmé être un cadre privilégié permettant d'étudier la migration des fluides dans la zone non saturée à l'échelle de 50 m, en réponse aux forçages naturels mais aussi artificiels. Dans ce chapitre de conclusion, une synthèse des moyens développés lors de cette thèse et des résultats obtenus est présentée. Puis ces résultats sont mis en perspective dans le cadre de la détection des explosions nucléaires souterraines. Les perspectives à plus ou moins court terme concernent l'application de l'approche couplée expérimentale et numérique aux aspects de la migration des gaz qui n'ont pas été étudiés dans cette thèse : migration des gaz à l'interface géosphère-atmosphère, pompage barométrique, ou encore effets des gradients thermiques.

Synthèse des résultats obtenus

Les objectifs de cette thèse étaient de déterminer les moteurs de la migration des gaz entre une source en profondeur et la surface, et de quantifier le délai temporel et la dilution induits par cette migration. Pour cela, d'importants moyens expérimentaux ont été développés pour mettre en œuvre puis mesurer et détecter les gaz dans une roche fracturée et partiellement saturée. La modélisation analytique et numérique a été utilisée en parallèle. La modélisation est nécessaire pour interpréter les données expérimentales, identifier les processus mis en jeu et quantifier les paramètres du milieu.

La mesure et la détection des gaz dans la zone non saturée ont été mises en place à différentes profondeurs et dans différents ouvrages d'observation (forages et chambre). En particulier, la chambre et le forage SCH1 ont été conçus, réalisés et instrumentés pour permettre une mesure des gaz au cœur de la zone non saturée, en deux profondeurs différentes. Un travail expérimental important a consisté à développer des protocoles pour la mesure des gaz dans ces installations, et à assurer un suivi continu et autonome sur le long terme. La détection des gaz doit s'appuyer sur un suivi multi-paramètres, non seulement des concentrations de plusieurs gaz, mais également d'autres paramètres environnementaux, en particulier la pression, la température et les flux d'eau. Un tel suivi, à la fois en profondeur et en surface, s'est avéré nécessaire pour pouvoir identifier et distinguer les différents forçages naturels, détecter et interpréter une sortie de traceur, au delà de la ligne de base.

La migration des gaz aux échelles de temps courtes, de quelques jours à quelques semaines, a été appréhendée à la fois par le suivi des gaz naturellement présents dans le milieu, mais aussi par des injections de gaz traceurs dans la chambre isolée. Le moteur principal est l'advection des gaz dans le réseau de fractures, sous l'effet des gradients de pression, naturels ou artificiels. Les mouvements d'eau ascendants dûs à la montée de la nappe, et descendants dûs à l'infiltration de la pluie ou de l'eau de fonte de la neige, sont également à l'origine de gradients de pression et de mouvements rapides et importants des gaz. Même s'ils sont de faible intensité, de l'ordre de quelques mbar, les gradients de pression d'origine naturelle, par exemple lors d'une anomalie dans le tunnel, ou d'origine artificielle, lors d'une expérience de traçage, ont des effets importants sur la migration et les concentrations en gaz. Ceci est dû soit à une perméabilité élevée, ce qui est le cas pour les fractures, soit à la mise en jeu de volumes de gaz importants, ce qui est le cas pour les mouvements d'eau et les fluctuations de pression atmosphériques.

La perméabilité et la porosité de la roche sont les deux paramètres du milieu qui interviennent dans le transport par advection, et qui doivent donc être connus. Leur détermination à des échelles allant de 1 m à 55 m, à partir d'expériences et de simulations numériques, a complété la vision des écoulements des fluides, eau et air, dans le milieu très hétérogène du Laboratoire Naturel de Roselend.

Aux échelles de temps longues, de quelques mois à quelques années, le moteur de la migration des gaz est le pompage barométrique, créé par les fluctuations de la pression atmosphérique. Dans un milieu à double perméabilité, avec une matrice peu perméable et un réseau de fractures plus perméable, les gaz migrent lentement vers la surface à la faveur des dépressions successives.

A l'issue de cette thèse, on dispose désormais au Laboratoire Naturel de Roselend d'un dispositif expérimental opérationnel qui sera utilisé pour réaliser un traçage au xénon puis pour d'autres expériences ultérieures.

Pertinence de l'étude menée au Laboratoire Naturel de Roselend pour la compréhension de la migration des gaz à partir des essais nucléaires souterrains

Les résultats obtenus dans cette thèse peuvent être mis en perspective dans le cadre de l'amélioration de la surveillance du Traité d'interdiction complète des essais nucléaires par la prise en compte de la migration des gaz vers la surface après une explosion nucléaire souterraine. Nous avons vu que le Laboratoire Naturel de Roselend, par sa géométrie et sa profondeur, peut être considéré comme un analogue d'un site d'essai nucléaire, à une échelle réduite. De plus, la migration des gaz à une échelle de 50 m, telle qu'elle est étudiée au Laboratoire Naturel de Roselend, s'applique naturellement aux 50 derniers mètres de migration des gaz, quelle que soit la profondeur d'un essai nucléaire. Pour les essais les plus profonds, la surpression est très atténuée vers la surface, et les expériences menées au Laboratoire Naturel de Roselend s'appliquent directement.

Dans ce contexte, les résultats obtenus dans cette thèse permettent de mieux comprendre la migration des gaz à partir de la cavité-cheminée vers la surface, aux temps courts comme aux temps longs. Ces résultats sont à mettre en regard des méthodes de vérification du Tice mettant en jeu les gaz radioactifs : réseau de surveillance mondiale

des radionucléides et mesures des gaz radioactifs lors d'une inspection sur site.

Sous l'effet de la surpression initiale dans la cavité-cheminée, une petite quantité de gaz radioactifs peut migrer dans des fractures présentes à proximité de la cavité-cheminée. Les gaz radioactifs, et en particulier les radionucléides, atteignent rapidement la surface, en quelques heures à quelques jours. La dilution du terme source lors de la migration vers la surface est très importante, et est encore accentuée par le transport atmosphérique. La détection précoce d'une explosion nucléaire souterraine par le réseau de surveillance mondiale des radionucléides ainsi que par les moyens nationaux est donc théoriquement possible dans les jours qui la suivent. Une telle détection correspond cependant à des activités très faibles, qui peuvent parfois être inférieures aux limites de détection des instruments.

Aux temps longs, les effets thermiques et surtout le pompage barométrique prennent le relais de la surpression initiale pour faire migrer les gaz radioactifs vers la surface. Les quantités de gaz qui peuvent atteindre la surface avec ces deux mécanismes restent limitées. Les méthodes de mesure des gaz radioactifs en sub-surface dans une zone supposée à la verticale de la cavité-cheminée ont une probabilité plus grande que le réseau de surveillance mondiale d'aboutir à une détection, car elles s'affranchissent de la dilution supplémentaire dans l'atmosphère. La détection de sorties de gaz radioactifs en sub-surface est cependant confrontée à des difficultés expérimentales pour le prélèvement et l'analyse des gaz, ainsi qu'à une forte variabilité spatiale et temporelle des concentrations.

La migration rapide des différents gaz ne s'accompagne pas d'un fractionnement. S'il y a un fractionnement, c'est probablement en raison des différentes chaînes de décroissance radioactive impliquées dans la formation des 4 isotopes de xénon d'intérêt pour la détection. En effet, elles interviennent avec des périodes radioactives très diverses (Carrigan *et al.*, 2013; Annenwandter, 2013). La diffusion, en particulier au cours du pompage barométrique, ne semble en revanche pas avoir un rôle prépondérant sur les fractionnements isotopiques (Carrigan *et al.*, 2013; Lowrey *et al.*, 2012). Cependant, les coefficients de diffusion des différents radionucléides n'ont pas encore été mesurés avec précision, même si les dispositifs expérimentaux pour le faire semblent avoir été mis en place (Perez *et al.*, 2012).

Perspectives : étude de l'interface entre la géosphère et l'atmosphère

La migration des gaz depuis la chambre C, à 50 m de profondeur, vers le forage d'observation SCH1, entre 5 et 10 m de profondeur, est maintenant bien comprise. Elle a nourri une compréhension plus globale de la migration des gaz dans les milieux géologiques. Il reste maintenant à comprendre la migration des gaz dans les derniers mètres sous la surface, à l'interface entre la géosphère et l'atmosphère. En effet, que ce soit pour la surveillance du Tice, d'un stockage ou de l'impact d'un site pollué, les mesures de gaz sont faites dans l'atmosphère. Les questions qui se posent sont les suivantes : quels sont les paramètres qui contrôlent la sortie des gaz à la surface ? Sur quels critères baser les choix spatiaux et temporels pour l'échantillonnage ? Comment améliorer la détection des gaz traceurs en surface ?

Dans cette thèse, un rôle important des variations de pression et de teneur en eau sur la migration des gaz a été montré. Les différences de pression et de teneur en eau sont fortes en surface, avec une variabilité tant spatiale que temporelle. Par ailleurs, les propriétés des milieux géologiques changent en allant vers la surface, avec une augmentation de la fracturation, et l'existence de strates aux comportements contrastés, milieux très poreux (par exemple des graviers) ou très imperméables (par exemple de l'argile), plus ou moins riches en eau. La migration des gaz depuis les milieux géologiques vers l'atmosphère est donc très probablement plus complexe dans les derniers mètres sous la surface que ce qui a été étudié à plus grande profondeur dans cette thèse. Pour autant, les briques de base nécessaires à la compréhension de ces transferts ont été élaborées au cours de ce travail. En lien avec les études déjà menées sur les transferts en surface au Laboratoire Naturel de Roselend (Pili *et al.*, 2008a; Perrier *et al.*, 2009), il ne fait pas de doute que cette problématique sera rapidement maîtrisée.

Les résultats obtenus dans ce travail apportent quelques premiers éléments de compréhension. La perméabilité du milieu et les flux d'eau déterminent le choix des forages superficiels à utiliser. La détection d'une sortie de gaz traceur est plus probable en période de baisse de pression, et elle est très probablement associée à une augmentation des gaz naturellement présents dans le milieu, ^{222}Rn et CO_2 .

Le suivi des gaz naturellement présents et des gaz utilisés comme traceurs dans les différents forages de sub-surface mais aussi à la surface du sol devrait permettre de compléter ces réponses. Des traçages à courte distance pourraient également être réalisés entre un segment du forage SCH1, isolé par des obturateurs gonflables, et la surface. Ces expériences amélioreraient la compréhension de l'influence des paramètres météorologiques et hydrologiques et la caractérisation de l'hétérogénéité du milieu fracturé.

Perspectives : traçages complémentaires

Les conditions réelles qui prévalent après une explosion nucléaire souterraine sont trop extrêmes pour que les expériences de traçages puissent réellement s'en rapprocher, et il est hors de propos de vouloir le faire. Isoler et reproduire un mécanisme apporte autant, sinon plus, qu'une expérience qui voudrait reproduire tous les comportements. Il suffit pour cela de définir le mécanisme à étudier, et les moyens de l'étude. Dans cette thèse, c'est la migration rapide des gaz sous l'effet des surpressions qui a été étudiée grâce à la réalisation de deux expériences de traçage entre la chambre C et la sub-surface. Des traçages complémentaires pourraient être réalisés pour explorer d'autres conditions.

L'utilisation du xénon, traceur principal d'un essai nucléaire souterrain, permettra de s'affranchir des différences de comportement existant avec les traceurs analogues utilisés jusqu'à présent (SF_6 , fréons, ^3He). Pour aller encore plus loin dans l'analogie avec la détection des explosions nucléaires souterraines, un traçage utilisant des radioxénons peut être envisagé. Un tel traçage permettrait de valider la chaîne de détection et les moyens réellement mis en jeu par le Tice.

Comme cela a été fait pour le xénon stable (Section 4.2.4), la quantité de radioxénon à injecter pour permettre une détection en surface peut être estimée. Avec une limite de détection des systèmes de mesure du radioxénon de l'ordre de 0,2 mBq/m³ pour le ^{133}Xe (Le Petit *et al.*, 2008; Auer *et al.*, 2010), et une dilution entre la chambre et la

surface de l'ordre de 10^6 pour les sorties rapides, l'activité à injecter dans la chambre pour obtenir une détection est de $24 \cdot 10^3$ Bq, bien inférieure au seuil de $3,4 \cdot 10^7$ Bq pour la manipulation de ^{133}Xe (sous hotte ventilée en zone surveillée, Delacroix *et al.*, 2004). Cette évaluation est à effectuer aussi pour d'autres isotopes (^{127}Xe , ^{131}Xe et ^{135}Xe).

La prise en compte de la migration des gaz associée aux anomalies et aux gradients de température après une explosion nucléaire (Sun et Carrigan, 2012) est également envisageable. Différents traçages thermiques pourraient être considérés, tels l'injection de vapeur d'eau ou un chauffage résistif dans la chambre. La détection des anomalies de température en surface se ferait alors grâce à des détecteurs thermiques.

Perspectives : simulations numériques

La simulation numérique doit enfin être poursuivie, pour rendre compte de la migration des traceurs aux temps courts comme aux temps longs. Les modèles numériques doivent être complétés pour rendre compte de la double perméabilité du milieu, soit à l'aide d'un modèle de fractures discrètes, soit d'un modèle de double continuum.

L'approche par modèle de fractures discrètes, abordée en collaboration avec Pierre M. Adler (UMR Sisyphe, Université Pierre et Marie Curie), semble prometteuse pour l'étude de la migration des gaz par pompage barométrique. Ce mécanisme de migration ne serait efficace que pour une fenêtre étroite des paramètres du milieu, qu'il faut définir et comparer aux situations expérimentales (Pili *et al.*, 2013, , P.M. Adler et C. Varloteaux, com. pers.).

Les espèces radioactives comme le radon-222 et les radioxénons doivent également être prises en compte dans les modèles. Les différentes constantes de désintégration et chaînes de production des radioxénons pourraient en effet être à l'origine de fractionnements (Carrigan *et al.*, 2013). Une fois développés et validés sur le cas du Laboratoire Naturel de Roselend, ces modèles numériques pourront être transposés à d'autres échelles et d'autres contextes hydrogéologiques d'intérêt.

Bibliographie

- Achim, P., Monfort, M., Le Petit, G., Gross, P., Douysset, G., Taffary, T., Blanchard, X. et Moulin, C. (2012). Analysis of Radionuclide Releases from the Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant Accident Part II. *Pure and Applied Geophysics*, pages 1–23.
- Adushkin, V. V. et Leith, W. S. (2001). The Containment of Soviet Underground Nuclear Explosions. Rapport technique USGS 01-312.
- Ahlers, C. F. et Liu, H. H. (2001). Calibrated properties model. Rapport technique MDL-NBS-HS-000003, Lawrence Berkeley National Laboratory.
- AirLiquide (2013). Encyclopédie des gaz, www.encyclopedia.airliquide.com, consulté le 20/05/2013.
- Alvarado, J. A. C., Barbecot, F., Purtschert, R., Gillon, M., Aeschbach-Hertig, W. et Kipfer, R. (2009). European climate variations over the past half-millennium reconstructed from groundwater. *Geophysical Research Letters*, 36.
- ANDRA (2013). www.andra.fr, consulté le 19/05/2013.
- Annewandter, R. (2013). Examining changes in radioxenon isotope activity ratios during subsurface transport. *In Science and Technology Conference, Vienna*. CTBTO.
- Arabelos, D., Asteriadis, G., Contadakis, M. E., Spatalas, S. D. et Sachsamanoglou, H. (1997). Atmospheric tides in the area of Thessaloniki. *Journal of Geodynamics*, 23(1):65–75.
- Auer, L. H., Rosenberg, N. D., Birdsell, K. H. et Whitney, E. M. (1996). The effects of barometric pumping on contaminant transport. *Journal of Contaminant Hydrology*, 24(2):145–166.
- Auer, M., Kumberg, T., Sartorius, H., Wernsperger, B. et Schlosser, C. (2010). Ten Years of Development of Equipment for Measurement of Atmospheric Radioactive Xenon for the Verification of the CTBT. *Pure and Applied Geophysics*, 167(4-5):471–486.
- Baehr, A. L. et Hult, M. F. (1991). Evaluation of unsaturated zone air permeability through pneumatic tests. *Water Resources Research*, 27(10):2605–2617.
- Baer, D. S., Paul, J. B., Gupta, M. et O’Keefe, A. (2002). Sensitive absorption measurements in the near-infrared region using off-axis integrated cavity output spectroscopy. *Proceedings of SPIE - The International Society for Optical Engineering*, 4817:167–176.

- Baldini, J. U. L., Baldini, L. M., McDermott, F. et Clipson, N. (2006). Carbon dioxide sources, sinks, and spatial variability in shallow temperate zone caves : evidence from Ballynamindra Cave, Ireland. *Journal of Cave and Karst Studies*, 68(1):4–11.
- Barenblatt, G. I. et Zheltov, I. P. (1960). Fundamental equations for the filtration of homogeneous fluids through fissured rocks. *Doklady Akademii Nauk Sssr*, 132(3):545–548.
- Barr, J. L., Humphries, S. D., Nehrir, A. R., Repasky, K. S., Dobeck, L. M., Carlsten, J. L. et Spangler, L. H. (2011). Laser-based carbon dioxide monitoring instrument testing during a 30-day controlled underground carbon release field experiment. *International Journal of Greenhouse Gas Control*, 5(1):138–145.
- Batiot-Guilhe, C., Seidel, J. L., Jourde, H., Hebrard, O. et Bailly-Comte, V. (2007). Seasonal variations of CO₂ and Rn-222 in a mediterranean sinkhole - spring (Causse d'Aumelas, SE France). *International Journal of Speleology*, 36(1):51–56.
- Beaubien, S. E., Jones, D. G., Gal, F., Barkwith, A. K. A. P., Braibant, G., Baubron, J. C., Ciotoli, G., Graziani, S., Lister, T. R., Lombardi, S., Michel, K., Quattrocchi, F. et Strutt, M. H. (2013). Monitoring of near-surface gas geochemistry at the Weyburn, Canada, CO₂-EOR site, 2001-2011. *International Journal of Greenhouse Gas Control*, 16, Supplement 1:S236–S262.
- Becker, A., Schurr, B., Kalinowski, M. B., Koch, K. et Brown, D. (2010). Introduction to the Topical Volume : Recent Advances in Nuclear Explosion Monitoring. *Pure and Applied Geophysics*, 167(4-5):373–379.
- Blessent, D., Jorgensen, P. R. et Therrien, R. (2013). Comparing Discrete Fracture and Continuum Models to Predict Contaminant Transport in Fractured Porous Media. *Groundwater*.
- Boardman, C. R., Rabb, D. D. et McArthur, R. D. (1964). Responses of four rock mediums to contained nuclear explosions. *Journal of Geophysical Research*, 69(16):3457–3469.
- Bocharov, V. S., Zelentsov, S. A. et Mikhailov, V. N. (1989). Characteristics of 96 underground nuclear explosions at the Semipalatinsk proving ground. *Atomic Energy (Translation of Atomnaya Energiya)*, 67(3):691–695.
- Bogdanov, I. I., Mourzenko, V. V., Thovert, J. F. et Adler, P. M. (2003). Two-phase flow through fractured porous media. *Physical Review E*, 68(2):026703.
- Bossart, P., Meier, P. M., Moeri, A., Trick, T. et Mayor, J. C. (2002). Geological and hydraulic characterisation of the excavation disturbed zone in the Opalinus Clay of the Mont Terri Rock Laboratory. *Engineering Geology*, 66(1-2):19–38.
- Bouchez, J. et Lecomte, R., éditeurs (2000). *The atolls of Mururoa and Fangataufa (French Polynesia) II. Nuclear testing. Mechanical, lumino-thermal and electromagnetic effects*, volume 2. CEA/DAM Direction des Essais.
- Boullier, A. (2004). Étude pétrographique des échantillons du site de Roselend (galerie CEA et alentours). Rapport technique non publié, Laboratoire de Géophysique Interne et Tectonophysique (Université de Grenoble).

- Bowyer, T., Olsen, K., Kirkham, R., Hayes, J., Humble, P., Woods, V., Mendoza, D., Emer, D. et Carrigan, C. (2013). Measurement of Radioxenon and Argon-37 Released into a Nuclear Explosion Cavity for Development/Evaluation of OSI Field Sampling Methods. *In Science and Technology Conference, Vienna*. CTBTO.
- Brooks, R. H. et Corey, A. T. (1966). Properties of porous media affecting fluid flow. *Journal of the Irrigation and Drainage Division*, IR 2:61–88.
- Burbey, T. J., Hisz, D., Murdoch, L. C. et Zhang, M. (2012). Quantifying fractured crystalline-rock properties using well tests, earth tides and barometric effects. *Journal of Hydrology*, 414-415:317–328.
- Cailteau, C., Pironon, J., de Donato, P., Vinsot, A., Fierz, T., Garnier, C. et Barres, O. (2011). FT-IR metrology aspects for on-line monitoring of CO₂ and CH₄ in underground laboratory conditions. *Analytical Methods*, 3(4):877–887.
- Carapezza, M. L., Inguaggiato, S., Brusca, L. et Longo, M. (2004). Geochemical precursors of the activity of an open-conduit volcano : The Stromboli 2002-2003 eruptive events. *Geophysical Research Letters*, 31(7).
- Carothers, J. e. a. (1995). Caging the dragon. The containment of underground explosions. Rapport technique DOE-NV-388, Lawrence Livermore National Laboratory.
- Carrigan, C., Emer, D., Townsend, M., Drellack, S., Chipman, V., Snelson-Gerlicher, C., Hunter, S., Sun, Y., Wagoner, J., Ruddle, D., Anderson, G., Felske, D., Myers, K. et Zucca, J. (2013). Underground Nuclear Explosion Test Bed for OSI/IMS Gas Release Scenarios : Phase I, Chemical Tracer Experiment. *In Science and Technology Conference, Vienna*. CTBTO.
- Carrigan, C. et Sun, Y. (2012). Detection of Noble Gas Radionuclides from an Underground Nuclear Explosion During a CTBT On-Site Inspection. *Pure and Applied Geophysics*, pages 1–18.
- Carrigan, C. R., Heinle, R. A., Hudson, G. B., Nitao, J. J. et Zucca, J. J. (1996). Trace gas emissions on geological faults as indicators of underground nuclear testing. *Nature*, 382(6591):528–531.
- Carrigan, C. R. et Nitao, J. J. (2000). Predictive and diagnostic simulation of in situ electrical heating in contaminated, low-permeability soils. *Environmental Science & Technology*, 34(22):4835–4841.
- Ceriani, S., Fügenschuh, B. et Schmid, S. (2001). Multi-stage thrusting at the "Penninic front" in the Western Alps between Mont-Blanc and Pelvoux Massifs. *International Journal of Earth Sciences*, 90:685–702.
- Chen, Z. X. (1989). Transient flow of slightly compressible fluids through double-porosity, double permeability systems - A state-of-the-art review. *Transport in Porous Media*, 4(2):147–184.
- Chiodini, G., Cioni, R., Guidi, M., Raco, B. et Marini, L. (1998). Soil CO₂ flux measurements in volcanic and geothermal areas. *Applied Geochemistry*, 13(5):543–552.

- Choubey, V. M., Bartarya, S. K. et Ramola, R. C. (2005). Radon variations in an active landslide zone along the Pindar River, in Chamoli District, Harhwal Lesser Himalaya, India. *Environmental Geology*, 47(6):745–750.
- Ciotoli, G., Etiope, G., Guerra, M., Lombardi, S., Duddridge, G. A. et Grainger, P. (2005). Migration of gas injected into a fault in low-permeability ground. *Quarterly Journal of Engineering Geology and Hydrogeology*, 38:305–320.
- Ciotoli, G., Lombardi, S. et Annunziatellis, A. (2007). Geostatistical analysis of soil gas data in a high seismic intermontane basin : Fucino Plain, central Italy. *Journal of Geophysical Research-Solid Earth*, 112(B5).
- Cohen, G., Loisy, C., Laveuf, C., Le Roux, O., Delaplace, P., Magnier, C., Rouchon, V., Garcia, B. et Cerepi, A. (2013). The CO₂-Vadose project : Experimental study and modelling of CO₂ induced leakage and tracers associated in the carbonate vadose zone. *International Journal of Greenhouse Gas Control*, 14:128–140.
- Croizé, L., Mondelain, D., Camy-Peyret, C., Janssen, C., Lopez, M., Delmotte, M. et Schmidt, M. (2010). Isotopic composition and concentration measurements of atmospheric CO₂ with a diode laser making use of correlations between non-equivalent absorption cells. *Applied Physics B : Lasers and Optics*, 101(1):411–421.
- Crotogino, F. et Quast, P. (1980). Compressed air storage caverns at Huntorf. *In Subsurface Space*, volume 2, pages 593–600, Stockholm, Sweden. Pergamon Press.
- Cui, X., Bustin, A. M. M. et Bustin, R. M. (2009). Measurements of gas permeability and diffusivity of tight reservoir rocks : different approaches and their applications. *Geofluids*, 9(3):208–223.
- Cuss, R. J., Harrington, J. F., Noy, D. J., Wikman, A. et Sellin, P. (2011). Large scale gas injection test (Lasgit) : Results from two gas injection tests. *Physics and Chemistry of the Earth*, 36(17-18):1729–1742.
- Dane, J. H., Hofstee, C. et Corey, A. T. (1998). Simultaneous measurement of capillary pressure, saturation, and effective permeability of immiscible liquids in porous media. *Water Resources Research*, 34(12):3687–3692.
- Darling, W. G., Gooddy, D. C., MacDonald, A. M. et Morris, B. L. (2012). The practicalities of using CFCs and SF₆ for groundwater dating and tracing. *Applied Geochemistry*, 27(9):1688–1697.
- De Marsily, G. (1986). *Quantitative Hydrogeology. Groundwater Hydrology for Engineers*. Academic Press, New-York.
- Delacroix, D., Guerre, J.-P. et Leblanc, P. (2004). Guide pratique Radionucléides & Radioprotection - Manuel pour la manipulation de substances radioactives dans les laboratoires de faible et moyenne activité. *In Vol. 39 Radioprotection*. EDP SCIENCES, Les Ulis.
- Dellinger, M. (2009). Cycle du carbone et rôle de l'altération par les eaux souterraines : l'exemple du laboratoire naturel de Roselend. Rapport de Master, Institut de Physique du Globe de Paris.

- Derlich, S. et Supiot, F. (1969). Phénoménologie générale des explosions nucléaires souterraines. Rapport technique CEA-R-3750, Commissariat à l'Energie Atomique.
- Dezayes, C. et Villemain, T. (2002). État de la fracturation dans la galerie CEA de Roselend et analyse de la déformation cassante dans le massif du Méraillat. Rapport technique non publié, Laboratoire de Géologie des Chaînes Alpines (Université de Savoie).
- Didier, D., Leone, L., Greneche, J.-M., Giffaut, E. et Charlet, L. (2012). Adsorption of hydrogen gas and redox processes in clays. *Environmental Science & Technology*, 46:3574–3579.
- Didier, M. (2012). *Étude du transfert réactif de l'hydrogène au sein de l'argilite*. Thèse de doctorat, Institut des Sciences de la Terre (Université de Grenoble 1).
- Doughty, C. (1999). Investigation of conceptual and numerical approaches for evaluating moisture, gas, chemical, and heat transport in fractured unsaturated rock. *Journal of Contaminant Hydrology*, 38(1-3):69–106.
- Duddridge, G., Durrance, E., Grainger, P., Merefield, J. et Lineham, T. (1995). Gas injection experiments with soil gas analysis : a method for the characterisation of potential gas migration pathways from radioactive waste repositories to the surface. In Dubois, C., éditeur : *Gas Geochemistry*, pages 369–389. University of Franche-Comté, Besançon, France.
- Evans, D. (2001). Flow and transport through unsaturated fractured rock : an overview. In Evans, D., Nicholson, T. et Rasmussen, T., éditeurs : *Flow and Transport through Unsaturated Fractured Rock*, pages 1–18. AGU, 2nd édition.
- Fabian, M. et Kumpel, H. J. (2003). Poroelasticity : observations of anomalous near surface tilt induced by ground water pumping. *Journal of Hydrology*, 281(3):187–205.
- Freifeld, B. M. (2001). *Estimation of Fracture Porosity in an Unsaturated Fractured Welded Tuff Using Gas Tracer Testing*. Thèse de doctorat, UC Berkeley, Lawrence Berkeley National Laboratory.
- Friedrichs, G., Bock, J., Temps, F., Fietzek, P., Kortzinger, A. et Wallace, D. W. R. (2010). Toward continuous monitoring of seawater (CO₂)-C-13/(CO₂)-C-12 isotope ratio and pCO₂ : Performance of cavity ringdown spectroscopy and gas matrix effects. *Limnology and Oceanography-Methods*, 8:539–551.
- Gaillardet, J. et Galy, A. (2008). Atmospheric science : Himalaya–Carbon Sink or Source? *Science*, 320(5884):1727–1728.
- Galy, A. et France-Lanord, C. (1999). Weathering processes in the Ganges-Brahmaputra basin and the riverine alkalinity budget. *Chemical Geology*, 159(1-4):31–60.
- Garcia, B., Delaplace, P., Rouchon, V., Magnier, C., Loisy, C., Cohen, G., Laveuf, C., Le Roux, O. et Cerepi, A. (2013). The CO₂-vadose project : Numerical modeling to perform a geochemical monitoring methodology and baseline performance assessment for various geochemical variables (gas flux, gas composition, stable isotopes and noble gases) in the carbonate vadose zone. *International Journal of Greenhouse Gas Control*, 14:247–258.

- Gascoyne, M. et Wuschke, D. M. (1997). Gas migration through water-saturated, fractured rock : Results of a gas injection test. *Journal of Hydrology*, 196(1-4):76–98.
- Gimmi, T., Schneebeil, M., Fluhler, H., Wydler, H. et Baer, T. (1997). Field-scale water transport in unsaturated crystalline rock. *Water Resources Research*, 33(4):589–598.
- Girault, F. et Perrier, F. (2012). Measuring effective radium concentration with large numbers of samples. Part II - general properties and representativity. *Journal of Environmental Radioactivity*, 113:189–202.
- Gréau, C. (2012). *Apport des gaz rares au suivi hydrogéochimique d'un stockage de CO₂ - Application à un analogue naturel de fuites*. Thèse de doctorat, Institut de Physique du Globe de Paris.
- Gregory, R. G. et Durrance, E. M. (1985). Helium, carbone-dioxide and oxygen soil gases - small-scale variations over fractured ground. *Journal of Geochemical Exploration*, 24(1):29–49.
- Guerra, D. (2009). Mesure du taux de renouvellement naturel de l'air dans la galerie souterraine de Roselend. Rapport technique DSU/SERAC/LEMAC/09-30, Institut de Radioprotection et de Sécurité Nucléaire.
- Guillon, S. (2010). Transferts des gaz en milieux poreux fracturés non saturés : expériences et simulations au Laboratoire Naturel de Roselend. Rapport de Master, Institut de Physique du Globe de Paris.
- Guillon, S., Pili, E. et Agrinier, P. (2012). Using a laser-based CO₂ carbon isotope analyser to investigate gas transfer in geological media. *Applied Physics B : Lasers and Optics*, 107:449–457.
- Guillon, S., Vu, T., Pili, E. et Adler, P. M. (2013). Field and numerical determinations of air permeability of unsaturated fractured porous rocks on various scales. *Water Resources Research*, 49:2801–2811.
- Harnisch, J. et Eisenhauer, A. (1998). Natural CF₄ and SF₆ on Earth. *Geophysical Research Letters*, 25(13):2401–2404.
- Hassouna, M., Espagnol, S., Robin, P., Paillat, J. M., Levasseur, P. et Li, Y. (2008). Monitoring NH₃, N₂O, CO₂ and CH₄ Emissions During Pig Solid Manure Storage - Effect of Turning. *Compost Science & Utilization*, 16(4):267–274.
- Hudson, B., Stubbs, T., Nilson, R. et Peterson, E. (1989). Recent nuclear cavity pressure measurements. Rapport technique UCRL-100962, Lawrence Livermore National Laboratory.
- Humphries, S. D., Nehrir, A. R., Keith, C. J., Repasky, K. S., Dobeck, L. M., Carlsten, J. L. et Spangler, L. H. (2008). Testing carbon sequestration site monitor instruments using a controlled carbon dioxide release facility. *Applied Optics*, 47(4):548–555.
- Jaunat, J., Huneau, F., Dupuy, A., Celle-Jeanton, H., Vergnaud-Ayraud, V., Aquilina, L., Labasque, T. et Le Coustumer, P. (2012). Hydrochemical data and groundwater dating to infer differential flowpaths through weathered profiles of a fractured aquifer. *Applied Geochemistry*, 27(10):2053–2067.

- Jodar, J., Medina, A. et Carrera, J. (2011). Gas tracer transport in a heterogeneous fracture in two-phase flow conditions. Experimental and modeling results. *Advances in Water Resources*, 34(11):1401–1412.
- Johnson, G., Mayer, B., Shevalier, M., Nightingale, M. et Hutcheon, I. (2011). Tracing the movement of CO₂ injected into a mature oilfield using carbon isotope abundance ratios : The example of the Pembina Cardium CO₂ Monitoring project. *International Journal of Greenhouse Gas Control*, 5(4):933–941.
- Johnson, G., Raistrick, M., Mayer, B., Shevalier, M., Taylor, S., Nightingale, M. et Hutcheon, I. (2009). The use of stable isotope measurements for monitoring and verification of CO₂ storage. In Gale, J., Herzog, H. et Braitsch, J., éditeurs : *Greenhouse Gas Control Technologies 9*, volume 1 de *Energy Procedia*, pages 2315–2322.
- Johnson, G. et Violet, C. E. (1958). Phenomenology of contained nuclear explosions. Rapport technique UCRL-5124, Lawrence Radiation Laboratory.
- Kalinowski, M. B., Axelsson, A., Bean, M., Blanchard, X., Bowyer, T. W., Brachet, G., Hebel, S., McIntyre, J. I., Peters, J., Pistner, C., Raith, M., Ringbom, A., Saey, P. R. J., Schlosser, C., Stocki, T. J., Taffary, T. et Ungar, R. K. (2010). Discrimination of Nuclear Explosions against Civilian Sources Based on Atmospheric Xenon Isotopic Activity Ratios. *Pure and Applied Geophysics*, 167(4-5):517–539.
- Kalinowski, M. B. et Tuma, M. P. (2009). Global radioxenon emission inventory based on nuclear power reactor reports. *Journal of Environmental Radioactivity*, 100(1):58–70.
- Kerstel, E. et Gianfrani, L. (2008). Advances in laser-based isotope ratio measurements : selected applications. *Applied Physics B-Lasers and Optics*, 92(3):439–449.
- Khalturin, V. I., Rautian, T. G., Richards, P. G. et Leith, W. S. (2005). A Review of Nuclear Testing by the Soviet Union at Novaya Zemlya, 1955-1990. *Science & Global Security*, 13(1-2):1–42.
- Kim, H.-M., Lettry, Y., Park, D., Ryu, D.-W., Choi, B.-H. et Song, W.-K. (2012). Field evaluation of permeability of concrete linings and rock masses around underground lined rock caverns by a novel in-situ measurement system. *Engineering Geology*, 137-138:97–106.
- King, C. Y. (1986). Gas geochemistry applied to earthquake prediction - an overview. *Journal of Geophysical Research-Solid Earth and Planets*, 91(B12):2269–2281.
- Klump, S., Grundl, T., Purtschert, R. et Kipfer, R. (2008). Groundwater and climate dynamics derived from noble gas, C-14, and stable isotope data. *Geology*, 36(5):395–398.
- Koudina, N., Garcia, R. G., Thovert, J. F. et Adler, P. M. (1998). Permeability of three-dimensional fracture networks. *Physical Review E*, 57(4):4466–4479.
- Kowalczyk, A. et Froelich, P. (2010). Cave air ventilation and CO₂ outgassing by radon-222 modeling : how fast do caves breathe? *Earth and Planetary Science Letters*, 289:209–219.

- Krevor, S., Perrin, J. C., Esposito, A., Rella, C. et Benson, S. (2010). Rapid detection and characterization of surface CO₂ leakage through the real-time measurement of delta(13) C signatures in CO₂ flux from the ground. *International Journal of Greenhouse Gas Control*, 4(5):811–815.
- La Rocca, P., Riggi, D. et Riggi, F. (2010). Time series analysis of barometric pressure data. *European Journal of Physics*, 31(3):645–655.
- Lagus, P. L., McKinnis, W. B., Hearst, J. R., Burkhard, N. R. et Smith, C. F. (1994). Field measurements of tracer gas transport by barometric pumping. Rapport technique UCRL-CR-119147, Maxwell, S-cubed division.
- Lai, C. T., Schauer, A. J., Owensby, C., Ham, J. M. et Ehleringer, J. R. (2003). Isotopic air sampling in a tallgrass prairie to partition net ecosystem CO₂ exchange. *Journal of Geophysical Research-Atmospheres*, 108(D18).
- Lambert, W. J. et Aharon, P. (2011). Controls on dissolved inorganic carbon and delta C-13 in cave waters from DeSoto Caverns : Implications for speleothem delta C-13 assessments. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 75(3):753–768.
- Le Petit, G., Armand, P., Brachet, G., Taffary, T., Fontaine, J. P., Achim, P., Blanchard, X., Piwowarczyk, J. C. et Pointurier, F. (2008). Contribution to the development of atmospheric radioxenon monitoring. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, 276(2):391–398.
- LeCain, G. (1997). Air-injection testing in vertical boreholes in welded and nonwelded tuff, Yucca Mountain, Nevada. Water-resources investigations report 96-4262, USGS.
- Leckrone, K. J. et Hayes, J. M. (1998). Water-induced errors in continuous-flow carbon isotope ratio mass spectrometry. *Analytical Chemistry*, 70(13):2737–2744.
- Lewicki, J. L., Birkholzer, J. et Tsang, C. F. (2007a). Natural and industrial analogues for leakage of CO₂ from storage reservoirs : identification of features, events, and processes and lessons learned. *Environmental Geology*, 52(3):457–467.
- Lewicki, J. L. et Hilley, G. E. (2012). Eddy covariance network design for mapping and quantification of surface CO₂ leakage fluxes. *International Journal of Greenhouse Gas Control*, 7:137–144.
- Lewicki, J. L., Oldenburg, C. M., Dobeck, L. et Spangler, L. (2007b). Surface CO₂ leakage during two shallow subsurface CO₂ releases. *Geophysical Research Letters*, 34(24).
- Lineham, T. R., Nash, P. J., Rodwell, W. R., Bolt, J., Watkins, V. M. B., Grainger, P., Heath, M. J. et Merefield, J. R. (1996). Gas migration in fractured rock : Results and modelling of a helium gas injection experiment at the Reskajeage Farm Test Site, SW England, United Kingdom. *Journal of Contaminant Hydrology*, 21(1-4):101–113.
- Liu, H. H., Bodvarsson, G. S. et Finsterle, S. (2002). A note on unsaturated flow in two-dimensional fracture networks. *Water Resources Research*, 38(9).

- Liu, H. H., Haukwa, C. B., Ahlers, C. F., Bodvarsson, G. S., Flint, A. L. et Guertal, W. B. (2003). Modeling flow and transport in unsaturated fractured rock : an evaluation of the continuum approach. *Journal of Contaminant Hydrology*, 62-3:173–188.
- Loisy, C., Cohen, G., Laveuf, C., Le Roux, O., Delaplace, P., Magnier, C., Rouchon, V., Cerepi, A. et Garcia, B. (2013). The CO₂-Vadose Project : Dynamics of the natural CO₂ in a carbonate vadose zone. *International Journal of Greenhouse Gas Control*, 14:97–112.
- Long, J. C. S., Remer, J. S., Wilson, C. R. et Witherspoon, P. A. (1982). Porous-media equivalents for networks of discontinuous fractures. *Water Resources Research*, 18(3):645–658.
- Lowrey, J., Biegalski, S. et Deinert, M. (2012). UTEX modeling of radioxenon isotopic fractionation resulting from subsurface transport. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, 296(1):129–134.
- Lowrey, J. D., Biegalski, S. R., Osborne, A. G. et Deinert, M. R. (2013). Subsurface mass transport affects the radioxenon signatures that are used to identify clandestine nuclear tests. *Geophysical Research Letters*, 40(1):111–115.
- Lu, N. (1999). Time-series analysis for determining vertical air permeability in unsaturated zones. *Journal of Geotechnical and Geoenvironmental Engineering*, 125(1):69–77.
- Male, E., Pickles, W., Silver, E., Hoffmann, G., Lewicki, J., Apple, M., Repasky, K. et Burton, E. (2010). Using hyperspectral plant signatures for CO₂ leak detection during the 2008 ZERT CO₂ sequestration field experiment in Bozeman, Montana. *Environmental Earth Sciences*, 60(2):251–261.
- Maron, C., Baubron, G., Herbreteau, L. et Massinon, B. (1993). Experimental study of a VAN network in the French Alps. *Tectonophysics*, 224(1-3):51–81.
- Marrero, T. R. et Mason, E. A. (1972). Gaseous diffusion coefficients. *Journal of Physical and Chemical Reference Data*, 1(1):3–118.
- Martinez, M. J. et Nilson, R. H. (1999). Estimates of barometric pumping of moisture through unsaturated fractured rock. *Transport in Porous Media*, 36(1):85–119.
- Massmann, J. et Farrier, D. F. (1992). Effects of atmospheric pressures on gas-transport in the vadose zone. *Water Resources Research*, 28(3):777–791.
- Mazot, A., Bernard, A., Fischer, T., Inguaggiato, S. et Sutawidjaja, I. S. (2008). Chemical evolution of thermal waters and changes in the hydrothermal system of Papan-dayan volcano (West Java, Indonesia) after the November 2002 eruption. *Journal of Volcanology and Geothermal Research*, 178(2):276–286.
- Mazurek, M. (2000). Geological and Hydraulic properties of water-conducting features in crystalline rocks. In Stober, I. et Bucher, K., éditeurs : *Hydrogeology of Crystalline Rocks*, pages 3–26. Kluwer Academic Publishers, Netherlands.
- McCulloch, A., Midgley, P. M. et Ashford, P. (2003). Releases of refrigerant gases (CFC-12, HCFC-22 and HFC-134a) to the atmosphere. *Atmospheric Environment*, 37(7):889–902.

- McKay, M. D., Beckman, R. J. et Conover, W. J. (2000). A comparison of three methods for selecting values of input variables in the analysis of output from a computer code. *Technometrics*, 42(1):55–61.
- Millington, R. et Quirk, J. (1961). Permeability of porous solids. *Transactions of the Faraday Society*, 57:1200–1207.
- Mishra, S. et Zuidema, P. (1991). Modelling gas migration from a low/intermediate level nuclear waste repository. In *Gas generation and release from radioactive waste repositories*, pages 253–264, Aix en Provence. OECD.
- Montzka, S. A., Kuijpers, L., Battle, M. O., Aydin, M., Verhulst, K. R., Saltzman, E. S. et Fahey, D. W. (2010). Recent increases in global HFC-23 emissions. *Geophysical Research Letters*, 37.
- Mourzenko, V. V., Bogdanov, I., Thovert, J. F. et Adler, P. M. (2011). Three-dimensional numerical simulation of single-phase transient compressible flows and well-tests in fractured formations. *Mathematics and Computers in Simulation*, 81(10):2270–2281.
- Mualem, Y. (1976). A new model for predicting the hydraulic conductivity of unsaturated porous media. *Water Resources Research*, 12(3):513–522.
- Neeper, D. A. (2002). Investigation of the vadose zone using barometric pressure cycles. *Journal of Contaminant Hydrology*, 54(1-2):59–80.
- Nilson, R. H. et Lie, K. H. (1990). Double-porosity modeling of oscillatory gas motion and contaminant transport in a fractured porous-medium. *International Journal for Numerical and Analytical Methods in Geomechanics*, 14(8):565–585.
- Nilson, R. H., Peterson, E. W., Lie, K. H., Burkhard, N. R. et Hearst, J. R. (1991). Atmospheric Pumping : A Mechanism Causing Vertical Transport of Contaminated Gases Through Fractured Permeable Media. *Journal of Geophysical Research*, 96: 21933–21848.
- NIST (2013). Webbook de Chimie, www.webbook.nist.gov/chemistry, consulté le 20/08/2013.
- Nitao, J. et Sun, Y. (2011). USNT Reference Manual of the NUFT Code for Yucca Mountain Project. Rapport technique non publié.
- Nitao, J. J. (1998). Reference manual for the NUFT flow and transport code, version 2.0. Rapport technique UCRL-MA-130651, Lawrence Livermore National Laboratory.
- Nitao, J. J. (2001). Some examples of the application and validation of the NUFT subsurface flow and transport code. Rapport technique UCRL-ID-145163, Lawrence Livermore National Laboratory.
- Norman, J. M., Garcia, R. et Verma, S. B. (1992). Soil surface CO₂ fluxes and the carbon budget of a grassland. *Journal of Geophysical Research-Atmospheres*, 97(D17):18845–18853.

- Norman, J. M., Kucharik, C. J., Gower, S. T., Baldocchi, D. D., Crill, P. M., Rayment, M., Savage, K. et Striegl, R. G. (1997). A comparison of six methods for measuring soil-surface carbon dioxide fluxes. *Journal of Geophysical Research-Atmospheres*, 102(D24):28771–28777.
- Nuttli, O. W. (1988). Lg magnitudes and yield estimated for underground Novaya Zemlya nuclear-explosions. *Bulletin of the Seismological Society of America*, 78(2): 873–884.
- Otice (2013). www.ctbto.org/nuclear-testing/, consulté le 03/04/2013.
- Ozarslan, A. (2012). Large-scale hydrogen energy storage in salt caverns. *International Journal of Hydrogen Energy*, 37(19):14265–14277.
- Ozima, M. et Podosek, F. A. (2002). *Noble Gas Geochemistry*. Cambridge University Press, 2nd édition.
- Patriarche, D., Pili, E., Adler, P. et Thovert, J.-F. (2007). Stereological analysis of fractures in the Roselend tunnel and permeability determination. *Water Resources Research*, 43:09421.
- Perez, C. A. R., Lowrey, J. D., Biegalski, S. et Deinert, M. (2012). Xenon diffusion studies with prompt gamma activation analysis. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, 291(1):261–265.
- Perrier, F., Morat, P., Yoshino, T., Sano, O., Utada, H., Gensane, O. et Le Mouél, J. L. (2004). Seasonal thermal signatures of heat transfer by water exchange in an underground vault. *Geophysical Journal International*, 158(1):372–384.
- Perrier, F., Richon, P. et Sabroux, J. C. (2005). Modelling the effect of air exchange on Rn-222 and its progeny concentration in a tunnel atmosphere. *Science of the Total Environment*, 350(1-3):136–150.
- Perrier, F., Richon, P. et Sabroux, J. C. (2009). Temporal variations of radon concentration in the saturated soil of Alpine grassland : The role of groundwater flow. *Science of the Total Environment*, 407(7):2361–2371.
- Peterson, E., Lagus, P. L. et Lie, K. H. (1977a). Summary of the Dining Car tracer-gas chimney pressurization studies. Rapport technique SSS-R-77-3185, Defense Nuclear Agency.
- Peterson, E., Lagus, P. L. et Lie, K. H. (1977b). Summary of the Ming Blade tracer-gas chimney pressurization studies. Rapport technique SSS-R-78-3535, Defense Nuclear Agency.
- Peterson, E., Lagus, P. L. et Lie, K. H. (1978). Summary of the Mighty Epic tracer-gas chimney pressurization studies. Rapport technique SSS-R-78-3542, Defense Nuclear Agency.
- Pili, E., Bureau, S., Perrier, F., Patriarche, D., Charlet, L., Adler, P. M. et Richon, P. (2008a). Reactive transport and residence times in unsaturated fractured rocks from field-scale experiments. In Barnett, Mark, O. et Kent, D. B., éditeurs : *Developments in Earth and Environmental Sciences*, volume 7, pages 441–468. Elsevier Science B.V.

- Pili, E., Dellinger, M., Charlet, L., Agrinier, P., Chabaux, F. et Richon, P. (2009). Transient geochemical and hydrogeological coupling during weathering and the carbon cycle in the critical zone. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 73(13):A1029–A1029.
- Pili, E., Guillon, S., Sabroux, J. C., Varloteaux, C. et Adler, P. (2013). Migration and Detection of Gas in Geological Media : Lessons Learned from the Roselend Natural Laboratory. In *Science and Technology Conference, Vienna*. CTBTO.
- Pili, E., Perrier, F. et Richon, P. (2004). Dual porosity mechanism for transient groundwater and gas anomalies induced by external forcing. *Earth and Planetary Science Letters*, 227(3-4):473–480.
- Pili, E., Richon, P., Moreira, M., Agrinier, P., Sabroux, J. C. et Adler, P. M. (2008b). The ROSELEND-Gas Project : Research on Sollicitation Effects in a Large-scale Experiment under Natural Dynamics with Gas. *EOS, Transactions, American Geophysical Union*, 89(53):H53A–1000.
- Pili, E., Tisserand, D. et Bureau, S. (2012). Origin, mobility, and temporal evolution of arsenic from a low-contamination catchment in Alpine crystalline rocks. *Journal of Hazardous Materials*, pages 1–9.
- Poirel, L. (2010). Étude de l'impact des variations du niveau du lac de Roselend sur le comportement hydro-mécanique de la nappe libre avoisinante, avec comme visée applicative l'explication des variations d'émission de Radon enregistrées dans le tunnel de Roselend. Rapport de Master, École Polytechnique.
- Provost, A.-S., Richon, P., Pili, E., Perrier, F. et Bureau, S. (2004). Fractured Porous Media Under Influence : The Roselend Experiment. *EOS, Transactions, American Geophysical Union*, 85(12):113–124.
- Pruess, K., Oldenburg, C. M. et Moridis, G. J. (1999). TOUGH2 user's guide, version 2.0. Rapport technique LBNL-43134, Lawrence Berkeley National Laboratory.
- Ramola, R. C., Choubey, V. M., Negi, M. S., Prasad, Y. et Prasad, G. (2008). Radon occurrence in soil-gas and groundwater around an active landslide. *Radiation Measurements*, 43(1):98–101.
- Ricciardi, L., Prevost, C., Bouilloux, L. et Sestier-Carlin, R. (2008). Experimental and numerical study of heavy gas dispersion in a ventilated room. *Journal of Hazardous Materials*, 152(2):493–505.
- Richon, P. (2011). *Le radon-222 traceur de la dynamique des systèmes géologiques. Méthodologie et traitement du signal, interprétation du comportement du radon-222 en milieux géologiques actifs*. Thèse de doctorat, Institut de Physique du Globe de Paris.
- Richon, P., Perrier, F., Pili, E. et Sabroux, J. C. (2009). Detectability and significance of 12 hr barometric tide in radon-222 signal, dripwater flow rate, air temperature and carbon dioxide concentration in an underground tunnel. *Geophysical Journal International*, 176(3):683–694.

- Richon, P., Perrier, F., Sabroux, J. C., Trique, M., Ferry, C., Voisin, V. et Pili, E. (2005). Spatial and time variations of radon-222 concentration in the atmospheres of a dead-end horizontal tunnel. *Journal of Environmental Radioactivity*, 78(2):179–198.
- Richon, P., Sabroux, J. C., Halbwachs, M., Vandemeulebrouck, J., Poussielgue, N., Tabbagh, J. et Punongbayan, R. (2003). Radon anomaly in the soil of Taal volcano, the Philippines : A likely precursor of the M 7.1 Mindoro earthquake (1994). *Geophysical Research Letters*, 30(9).
- Riechelmann, D. F. C., Schroder-Ritzrau, A., Scholz, D., Fohlmeister, J., Spotl, C., Richter, D. K. et Mangini, A. (2011). Monitoring Bunker Cave (NW Germany) : A prerequisite to interpret geochemical proxy data of speleothems from this site. *Journal of Hydrology*, 409(3-4):682–695.
- Riedmann, R. A. et Purtschert, R. (2011). Natural (^{37}Ar) Concentrations in Soil Air : Implications for Monitoring Underground Nuclear Explosions. *Environmental Science & Technology*, 45(20):8656–8664.
- Robertson, J. (1969). Behavior of xenon-133 gas after injection underground : molecular diffusion, materials balance, and barometric pressure effects. Rapport technique, USGS Idaho.
- Saey, P. R. J., Auer, M., Becker, A., Hoffmann, E., Nikkinen, M., Ringbom, A., Tinker, R., Schlosser, C. et Sonck, M. (2010a). The influence on the radioxenon background during the temporary suspension of operations of three major medical isotope production facilities in the Northern Hemisphere and during the start-up of another facility in the Southern Hemisphere. *Journal of Environmental Radioactivity*, 101(9):730–738.
- Saey, P. R. J., Schlosser, C., Achim, P., Auer, M., Axelsson, A., Becker, A., Blanchard, X., Brachet, G., Cella, L., De Geer, L. E., Kalinowski, M. B., Le Petit, G., Peterson, J., Popov, V., Popov, Y., Ringbom, A., Sartorius, H., Taffary, T. et Zahringer, M. (2010b). Environmental Radioxenon Levels in Europe : a Comprehensive Overview. *Pure and Applied Geophysics*, 167(4-5):499–515.
- Saltelli, A., Tarantola, S. et Chan, K. P. S. (1999). A quantitative model-independent method for global sensitivity analysis of model output. *Technometrics*, 41(1):39–56.
- Schauer, A. J., Lott, M. J., Cook, C. S. et Ehleringer, J. R. (2005). An automated system for stable isotope and concentration analyses of CO_2 from small atmospheric samples. *Rapid Communications in Mass Spectrometry*, 19(3):359–362.
- Scheidegger, Y., Brennwald, M. S., Fleitmann, D., Jeannin, P. Y., Wieler, R. et Kipfer, R. (2011). Determination of Holocene cave temperatures from Kr and Xe concentrations in stalagmite fluid inclusions. *Chemical Geology*, 288(1-2):61–66.
- Schoengold, C., Demarre, M. et Kirkwood, E. (1996). Radiological effluents released from U.S. continental tests 1961 through 1992. Rapport technique DOE/NV-317 (Rev 1) UC-702, US Department of Energy- Nevada Operation Office.
- Senger, R., Marschall, P. et Bühler, C. (1998). Gas tracer transport in two-phase flow field : numerical simulations and field experiments at the Grimsel Test Site (GTS), Switzerland. In *TOUGH Symposium 1998*, pages 83–88, Berkeley.

- Shcheka, S. S. et Keppler, H. (2012). The origin of the terrestrial noble-gas signature. *Nature*, 490(7421):531–535.
- Shumway, R. H. (2001). Classical and Bayesian seismic yield estimation : The 1998 Indian and Pakistani tests. *Pure and Applied Geophysics*, 158(11):2275–2290.
- Sibley, R. D. (1992). Gas migration studies at a disused mine to detect possible rock fracture patterns and the extent of underground workings. *Quarterly Journal of Engineering Geology*, 25(1):47–56.
- Sobol, I. M. (1993). Sensitivity estimates for nonlinear mathematical models. *Mathematics Modeling and Computers Experiments*, 1(4):407–414.
- Sorey, M. L., Evans, W. C., Kennedy, B. M., Farrar, C. D., Hainsworth, L. J. et Hausback, B. (1998). Carbon dioxide and helium emissions from a reservoir of magmatic gas beneath Mammoth Mountain, California. *Journal of Geophysical Research-Solid Earth*, 103(B7):15303–15323.
- Stauffer, P. H., Birdsell, K. H., Witkowski, M. S. et Hopkins, J. K. (2005). Vadose zone transport of 1,1,1-trichloroethane : Conceptual model validation through numerical simulation. *Vadose Zone Journal*, 4(3):760–773.
- Strazisar, B. R., Wells, A. W., Diehl, J. R., Hammack, R. W. et Veloski, G. A. (2009). Near-surface monitoring for the ZERT shallow CO(2) injection project. *International Journal of Greenhouse Gas Control*, 3(6):736–744.
- Stump, B. W., Pearson, D. C. et Reinke, R. E. (1999). Source comparisons between nuclear and chemical explosions detonated at Rainier Mesa, Nevada Test Site. *Bulletin of the Seismological Society of America*, 89(2):409–422.
- Sturm, P. et Knohl, A. (2010). Water vapor delta H-2 and delta O-18 measurements using off-axis integrated cavity output spectroscopy. *Atmospheric Measurement Techniques*, 3(1):67–77.
- Sun, Y., Buscheck, T. A., Lee, K. H., Hao, Y. et James, S. C. (2010). Modeling Thermal-Hydrologic Processes for a Heated Fractured Rock System : Impact of a Capillary-Pressure Maximum. *Transport in Porous Media*, 83(3):501–523.
- Sun, Y. et Carrigan, C. (2012). Modeling Noble Gas Transport and Detection for The Comprehensive Nuclear-Test-Ban Treaty. *Pure and Applied Geophysics*, pages 1–16.
- Sun, Y., Tong, C., Duan, Q., Buscheck, T. A. et Blink, J. A. (2011). Combining Simulation and Emulation for Calibrating Sequentially Reactive Transport Systems. *Transport in Porous Media*, 92(2):509–526.
- Sun, Y., Tong, C., Trainor-Guitton, W. J., Lu, C., Mansoor, K. et Carroll, S. A. (2013). Global sampling for integrating physics-specific subsystems and quantifying uncertainties of CO2 geological sequestration. *International Journal of Greenhouse Gas Control*, 12:108–123.
- Svensson, U. (2001). A continuum representation of fracture networks. Part II : application to the Aspö Hard Rock Laboratory. *Journal of Hydrology*, 250(1-4):187–205.

- Tanner, A. (1964). Radon Migration in the Ground : a Review. *In* Adams, J. et Lowder, W., éditeurs : *Natural radiation Environment*, volume 1, pages 161–190.
- Tanner, A. (1993). Methods of characterization of ground for assessment of indoor radon potential at a site. *In* Gundersen, L. C. et Wanty, R., éditeurs : *Field studies of Radon in rocks, soils, and water*, pages 1–18. USGS.
- Tarantola, A. (2005). *Inverse Problem Theory and Methods for Model Parameters Estimation*. SIAM, Philadelphia.
- Taylor, R. W. (1973). Thermal effects of underground nuclear explosions. *Nuclear Technology*, 18(2):185–193.
- Tong, C. (2012). PSUADE Short Manual (Version 1.4d). Rapport technique 94551-0808, Lawrence Livermore National Laboratory.
- Toutain, J. et Baubron, J.-C. (1999). Gas geochemistry and seismotectonics : a review. *Tectonophysics*, 304:1–27.
- Trique, M. (1999). *Etude en site naturel des phénomènes physiques associés au cycle sismique*. Thèse de doctorat, Université Joseph Fourier - Grenoble 1.
- Trique, M., Perrier, F., Froidefond, T., Avouac, J. P. et Hautot, S. (2002). Fluid flow near reservoir lakes inferred from the spatial and temporal analysis of the electric potential. *Journal of Geophysical Research-Solid Earth*, 107(B10):2239.
- Trique, M., Richon, P., Perrier, F., Avouac, J. P. et Sabroux, J. C. (1999). Radon emanation and electric potential variations asociated with transient deformation near reservoir lakes. *Nature*, 399(6732):137–141.
- Tuzson, B., Mohn, J., Zeeman, M. J., Werner, R. A., Eugster, W., Zahniser, M. S., Nelson, D. D., McManus, J. B. et Emmenegger, L. (2008). High precision and continuous field measurements of delta C-13 and delta O-18 in carbon dioxide with a cryogen-free QCLAS. *Applied Physics B-Lasers and Optics*, 92(3):451–458.
- Ullah, S. et Moore, T. R. (2011). Biogeochemical controls on methane, nitrous oxide, and carbon dioxide fluxes from deciduous forest soils in eastern Canada. *Journal of Geophysical Research-Biogeosciences*, 116.
- van Bochove, E., Jones, H. G., Bertrand, N. et Prevost, D. (2000). Winter fluxes of greenhouse gases from snow-covered agricultural soil : Intra-annual and interannual variations. *Global Biogeochemical Cycles*, 14(1):113–125.
- Van Genuchten, M. T. (1980). A closed-form equation for predicting the hydraulic conductivity of unsaturated soils. *Soil Science Society of America Journal*, 44(5):892–898.
- Van Ngoc, P., Boyer, D., Perrier, F. et Le Mouël, J.-L. (2001). Mécanismes de génération de bruits telluriques dans la bande ultrabasse fréquence (UBF) : sources possibles des signaux dits "signaux électro-sismiques" (SES). *C.R. Acad. Sci. Paris*, 333:255–262.
- Varotsos, P. et Alexopoulos, K. (1984). Physical-properties of the variations of the electric-fiels of the earth preceding earthquakes. 1. *Tectonophysics*, 110(1-2):73–98.

- Verheyden, S., Genty, D., Deflandre, G., Quinif, Y. et Keppens, E. (2008). Monitoring climatological, hydrological and geochemical parameters in the Pere Noel cave (Belgium) : implication for the interpretation of speleothem isotopic and geochemical time-series. *International Journal of Speleology*, 37(3):221–234.
- Verkouteren, R. M. (1999). Preparation, characterization, and value assignment of carbon dioxide isotopic reference materials : RMs 8562, 8563, and 8564. *Analytical Chemistry*, 71(20):4740–4746.
- Vrugt, J. A., Stauffer, P. H., Wohling, T., Robinson, B. A. et Vesselinov, V. V. (2008). Inverse modeling of subsurface flow and transport properties : A review with new developments. *Vadose Zone Journal*, 7(2):843–864.
- Vu, T. (2012). *Application of the Level Set Method in hydrogeology*. Thèse de doctorat, Université Pierre et Marie Curie (Paris 6).
- Walter Anthony, K. M., Anthony, P., Grosse, G. et Chanton, J. (2012). Geologic methane seeps along boundaries of Arctic permafrost thaw and melting glaciers. *Nature Geoscience*, 5(6):419–26.
- Wassermann, J., Sabroux, J. C., Pontreau, S., Bondiguel, S., Guillon, S., Richon, P. et Pili, E. (2011). Characterization and monitoring of the excavation damaged zone in fractured gneisses of the Roselend tunnel, French Alps. *Tectonophysics*, 503(1-2):155–164.
- Welles, J. M., Demetriades-Shah, T. H. et McDermitt, D. K. (2001). Considerations for measuring ground CO₂ effluxes with chambers. *Chemical Geology*, 177(1-2):3–13.
- Wells, A. W., Diehl, J. R., Bromhal, G., Strazisar, B. R., Wilson, T. H. et White, C. M. (2007). The use of tracers to assess leakage from the sequestration of CO₂ in a depleted oil reservoir, New Mexico, USA. *Applied Geochemistry*, 22(5):996–1016.
- Wen, X.-F., Meng, Y., Zhang, X.-Y., Sun, X.-M. et Lee, X. (2013). Evaluating calibration strategies for isotope ratio infrared spectroscopy for atmospheric ¹³CO₂/¹²CO₂ measurement. *Atmospheric Measurement Techniques*, 6(1):1491–1501.
- Wieczorek, K., Zhang, C., Jockwer, N. et Rothfuchs, T. (2007). Investigation of the hydraulic-mechanical behaviour and the gas migration issue in the Opalinus clay at the Mont Terri URL. In *Radioactive waste disposal in geological formations / RepoSafe 2007*, volume 2A, pages 115–122, Braunschweig.
- WMO (2010). Scientific Assessment of Ozone Depletion 2010. Rapport technique, World Meteorological Organization.
- Wu, Y. S., Lu, G. P., Zhang, K. et Bodvarsson, G. S. (2004). A mountain-scale model for characterizing unsaturated flow and transport in fractured tuffs of Yucca Mountain. *Vadose Zone Journal*, 3(3):796–805.
- Xu, W. J., Shao, H., Hesser, J., Wang, W., Schuster, K. et Kolditz, O. (2013). Coupled multiphase flow and elasto-plastic modelling of in-situ gas injection experiments in saturated claystone (Mont Terri Rock Laboratory). *Engineering Geology*, 157:55–68.

- Zyvoloski, G. A., Robinson, B. A. et Viswanathan, H. S. (2008). Generalized dual porosity : A numerical method for representing spatially variable sub-grid scale processes. *Advances in Water Resources*, 31(3):535–544.

Annexes

A Caractérisation de la zone endommagée autour du tunnel de Roselend

La caractérisation de la zone endommagée autour du tunnel de Roselend, appelée EDZ (Excavation Damaged Zone), a été réalisée en 2009 et 2010, dans le cadre du post-doctorat de Jérôme Wasserman à l'IRSN. Cette étude a été l'occasion des premières mesures de perméabilité en forage, avec le développement d'un protocole expérimental de mesure de la perméabilité par mise en dépression. Des profils de perméabilité ont ainsi été réalisés le long de forages Perm, perpendiculaires à la paroi du tunnel, ce qui a permis de déterminer une extension de l'EDZ de 1 mètre autour du tunnel. Ces travaux ont fait l'objet d'un article publié en 2011 dans *Tectonophysics*, pour lequel je suis co-auteur, et qui est présenté ci-après. Les chroniques de pression mesurées dans les forages Perm 1 et Perm 4 sont également présentées dans cet article, à la fois pour déterminer la diffusivité pneumatique à partir du déphasage, mais aussi pour montrer les modifications de la pression observées simultanément aux anomalies en radon dans le tunnel.

Dans le cadre de cette thèse, le protocole de mesure de la perméabilité dans les forages a été repris, transposé en surpression, pour caractériser la perméabilité dans tous les forages, dans la paroi du tunnel et en surface, ainsi que dans la chambre C. La détermination de la perméabilité à partir des chroniques de pression a été poursuivie et précisée, tout comme les observations dans les forages liées aux anomalies dans le tunnel. Ces résultats sont repris dans les Chapitres 2 et 3.

A.1 *Characterization and monitoring of the excavation damaged zone in fractured gneisses of the Roselend tunnel, French Alps* (article)



Characterization and monitoring of the excavation damaged zone in fractured gneisses of the Roselend tunnel, French Alps

J. Wassermann^{a,*}, J.C. Sabroux^a, S. Pontreau^a, S. Bondiguel^a, S. Guillon^b, P. Richon^b, E. Pili^b

^a Institut de Radioprotection et de Sûreté Nucléaire — IRSN, Centre de Saclay, Gif-sur-Yvette, France

^b CEA, DAM, DIF, F-91297 Arpajon cedex, France

ARTICLE INFO

Article history:

Received 6 May 2010

Received in revised form 23 September 2010

Accepted 12 October 2010

Available online 20 October 2010

Keywords:

Fractured gneisses

Excavation damaged zone

Permeability

Pneumatic diffusivity

Time-lag

Attenuation

ABSTRACT

The Roselend dead-end tunnel was excavated in the last fifties by blasting in the Méraillat crystalline rock mass located on the shore of an artificial reservoir lake in the French Alps. Successive emptying and filling of the reservoir lake induce mechanical deformation of the rock mass. Thus, this tunnel is an exceptional place to study the evolution of the damaged zone (due to the excavation, and named EDZ) under a periodic mechanical or hydraulic loading. From the perspective of radioactive waste isolation in deep geological strata, the EDZ transport properties, and their evolution with time, are of major importance. The purpose of this study is, on the one hand, to quantify the transport properties of the EDZ of the Roselend tunnel through permeability measurements and drill core observations; on the other hand, to monitor the response of the EDZ to external solicitations via borehole pressure measurements. The air permeability has been deduced from pneumatic tests performed along several boreholes. The permeability profiles and the observation of drill cores lead to an estimation of the extent of the EDZ, of about 1 m around the tunnel. The response of the EDZ to barometric pumping has been observed through borehole pressure monitoring. Time-lag and attenuation of the barometric signal that propagates into the EDZ have been measured at a metric scale. The identification of potential time-lag and attenuation variations needs further investigations, the long time series of borehole pressure monitoring shows pressure increase probably due to percolating water during successive snow cover and thawing periods as observed in the Roselend area during winter.

© 2010 Elsevier B.V. All rights reserved.

1. Introduction

Excavation of underground openings induces disturbances of the host rocks. These disturbances — depending on rock mass characteristics, excavation methods and *in situ* stress conditions — consist generally in opening and closure of pre-existing fractures and cracks, opening of new ones and redistribution of stresses. The excavation damaged zone (EDZ) is defined as the zone immediately around the excavation boundary where these damage processes strongly affect physical, mechanical and hydraulic properties of the rock (Martino and Chandler, 2004). For nuclear waste geological repository, the EDZ can constitute a pathway for radio nuclides from the cavity to the hydrosphere or atmosphere. Knowledge of the EDZ extent, its mechanical and transport properties, and their evolution with time, is thus important.

Geophysical methods are now widely used *in situ* to investigate the EDZ characteristics such as its extent and its mechanical properties in sedimentary or crystalline rock mass. These methods, mostly based on seismic velocity measurements (e.g. Alheid et al., 1996; Cabrera et al., 1999; Sato et al., 2000; Wright et al., 2000; Malmgren et al., 2007; Nicollin et al., 2008), enable a non-invasive investigation of a large volume of rock around an excavation. Acoustic emission monitoring is also used to quantify and localize the rock mass damage (Falls and Young, 1998; Cai et al., 2001) and in particular to follow the EDZ evolution during an excavation process. Geo-electric methods in indurated clay rocks (Gibert et al., 2006; Nicollin et al., 2010) and radar reflection survey in crystalline rock mass (Kwon et al., 2009) are also employed. All these geophysical methods that yield quantitative results are most often used in conjunction with each other (Falls and Young, 1998; Cabrera et al., 1999; Cosma et al., 2001) and with other techniques such as visual inspection (Martin et al., 1997; Cabrera et al., 1999), core drilling analysis (Bossart et al., 2002), convergence measurements (Sheng et al., 2002), that give qualitative and quantitative but localized informations about the EDZ characteristics. Hydraulic and pneumatic methods including hydraulic conductivity measurements, gas injection or extraction tests in boreholes, constitute a localized invasive

* Corresponding author, now at GEC, Université de Cergy-Pontoise, France. Tel.: +33 (0)1 34 25 73 63.

E-mail address: jerome.wassermann@u-cergy.fr (J. Wassermann).

means to delineate the EDZ and to estimate its transport properties (Jakubick and Franz, 1993; Souley et al., 2001; Bossart et al., 2002; Matray et al., 2007; Shao et al., 2008).

Our study focuses on the EDZ around a dead-end tunnel excavated almost sixty years ago by blasting in a crystalline rock mass located on the shore of an artificial reservoir lake in the French Alps. Successive emptying and filling of the reservoir lake induce mechanical deformation of the rock mass. Previous investigators have shown that tilt measurements performed in the tunnel exhibit yearly variations linearly correlated to the variations of the lake level (Trique et al., 1999). Thus, this tunnel appears as a distinctive place to study the evolution of an EDZ under a periodic mechanical loading.

First, we present here the Underground Research Laboratory (URL), its geological setting and natural fracture network. Next, the experimental set-up used to delineate the EDZ and estimate its permeability is described, and the borehole pressure instrumentation designed to monitor the potential evolution of the EDZ pneumatic diffusivity is presented. Then, we depict data concerning:

- the estimation of the EDZ extent through permeability measurements and direct observations of drill cores,
- the EDZ response to external forces through borehole pressure monitoring.

Finally, our results are discussed in the light of other studies of fractured rock mass performed *via* permeability measurements and borehole pressure monitoring.

2. Site description

The Roselend URL occupies a sub-horizontal dead-end tunnel. It has been excavated by blasting in 1954 by Électricité de France (EDF) to explore the rock mass characteristics before the construction of the Roselend dam anchored to the Meraillat crystalline massif (French Alps). The Roselend tunnel is located at an altitude of 1576 m near the west bank of the Roselend artificial lake at about 20 m above the highest water level (Fig. 1). This nearly straight excavation is about 128 m long and 2 m in diameter, with a north–east orientation (Provost et al., 2004). It crosses, from its entrance to its end, fractured micashists and gneisses successively (Fig. 2). Fractures related to the Alpine orogeny and longer than 20 cm have been collected (Dezayes et al., 2003). This natural fracture pattern presents a heterogeneous metric fracture density varying from 0.6 to 1.8 fractures per meter along the tunnel. 172 small fractures, which partially intersect the tunnel, and 21 large ones, fully intersecting the tunnel, have been georeferenced by Dezayes et al. (2003) (see Fig. 2b). Water content in the massif and flow rates of percolating waters depend on seasonal precipitation (drought, rain and snow alternating periods) characterizing the mountainous Roselend environment. Three zones with different vertical flow rates are distinguished by Dezayes et al. (2003): (1) a moderate flow within a high fracture frequency zone at the beginning of the gallery from the entrance to the first 50 m (Fig. 2b); (2) a dry zone in the low fracture frequency of the middle segment of the gallery (from 50 m to 110 m); (3) an important water flow drained by some large fractures at the end segment of the gallery (from 110 m to the end).

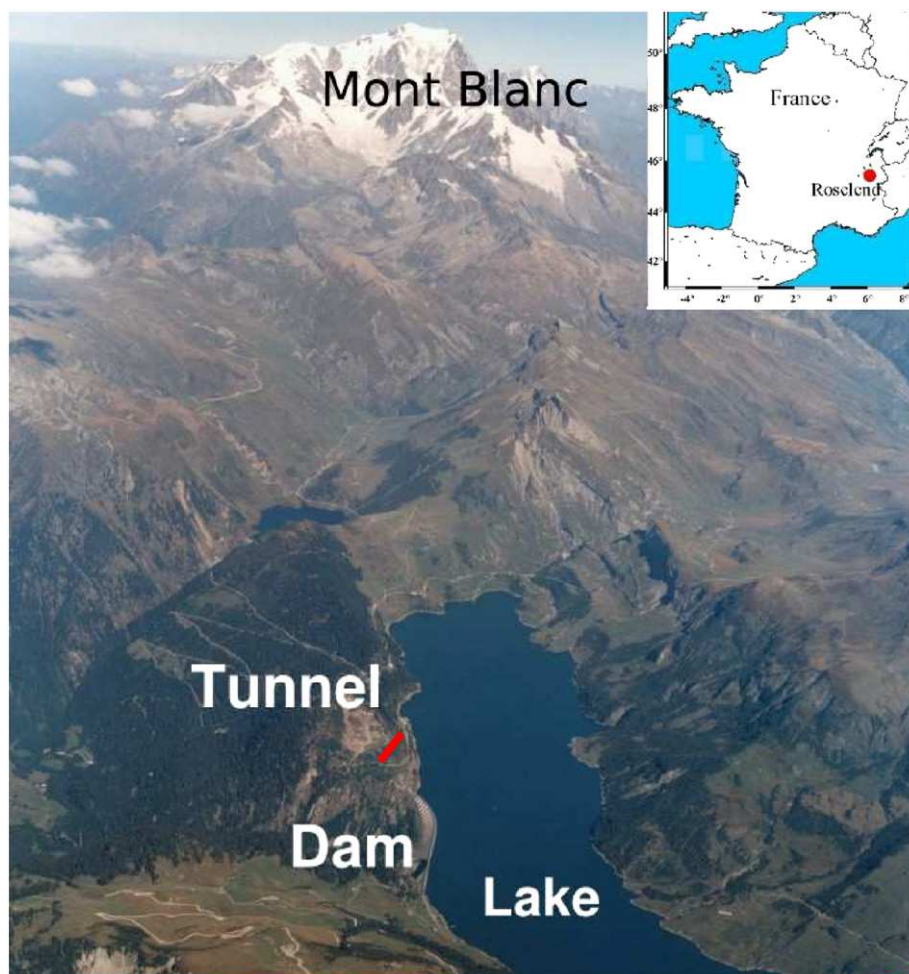


Fig. 1. Aerial view showing the Roselend artificial lake, its dam (in the south-west of the Mont Blanc, French Alps) and the tunnel location, in red (from Trique et al., 1999).

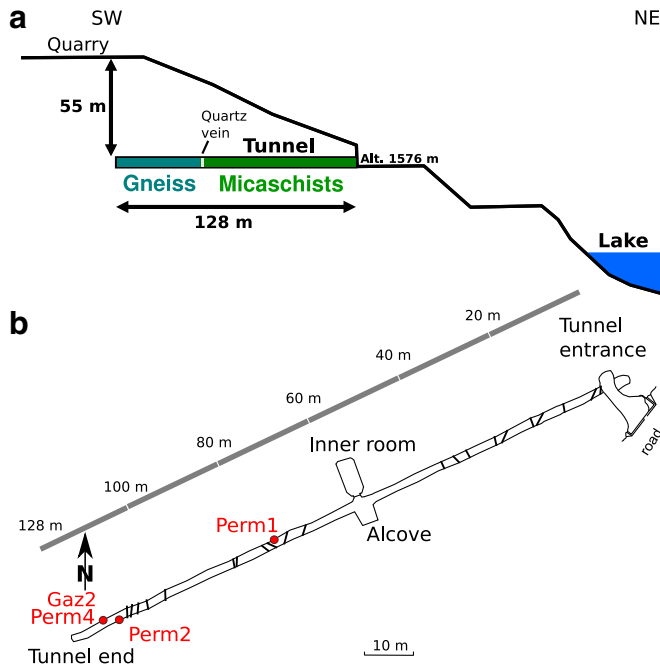


Fig. 2. a) Schematic cross-section of the Méraillat massif, and longitudinal scale drawing of the 128 m long sub-horizontal dead-end tunnel crossing fractured micashists and gneisses (modified from Pili et al., 2008). The tunnel entrance is at an altitude of 1576 m near the west bank of the artificial lake. b) Map of the emplacements of the instrumented radial boreholes Perm1 (75 m), Perm2 (122 m), Perm4 and Gaz2 (125 m) along the tunnel with Gaz2 borehole above Perm4 one; thick black bars represent the natural fractures that fully intersect the tunnel (from Patriarche et al., 2007).

3. Measuring systems and procedures

3.1. Pneumatic testing

The pneumatic tests are based on the method of air extraction from an unsaturated or partially saturated volume of rock. This

method has been widely used both in crystalline and sedimentary rocks (Jakubick and Franz, 1993; Bossart et al., 2002; Matray et al., 2007). The pneumatic response to gas extraction allows for a gas permeability estimation. The EDZ extent is then deduced from the permeability profile along boreholes drilled perpendicular to the tunnel, due to a commonly sharp permeability contrast between disturbed and undisturbed rocks.

The radial boreholes with a diameter of 80 mm and a length between 1.6 and 2.6 m were first drilled in the central part of the tunnel and near its end (see Fig. 2b). The measurement system designed to perform air extraction tests along boreholes consists of (Fig. 3):

- a double mechanical packer placed in the borehole, with two inflatable black rubber elements about 30 cm long that enable the isolation of a ≈ 40 cm long interval (measurement chamber in the figure),
- a collector to prevent water from entering the measuring instruments,
- a pressure transducer (Keller) and a flow-meter (Hastings) connected to acquisition systems (a Hydra system from Fluke and a Sefram tracer),
- a vacuum pump (Laboport with critical vacuum of about 8 mbar).

The measuring ranges and precisions of the pneumatic test instruments are displayed in Table 1. A typical pneumatic test is shown in Fig. 4, consisting in the following four step sequence:

- Firstly the double mechanical packer is installed into the borehole and inflated with air at a pressure of 6 bar.
- Secondly, the air extraction from the measurement chamber starts from the tunnel atmospheric pressure equilibrium (at about 835 mbar at this altitude) to a steady-state pressure (blue curve in Fig. 4) corresponding to a steady-state flow (red curve).
- Then, the evacuation is stopped, the third valve (in red, Fig. 3) of the system is closed and the vacuum pump is turned off. Recovery of the natural barometric pressure occurs through the fracture network connected to the tunnel. A check for possible

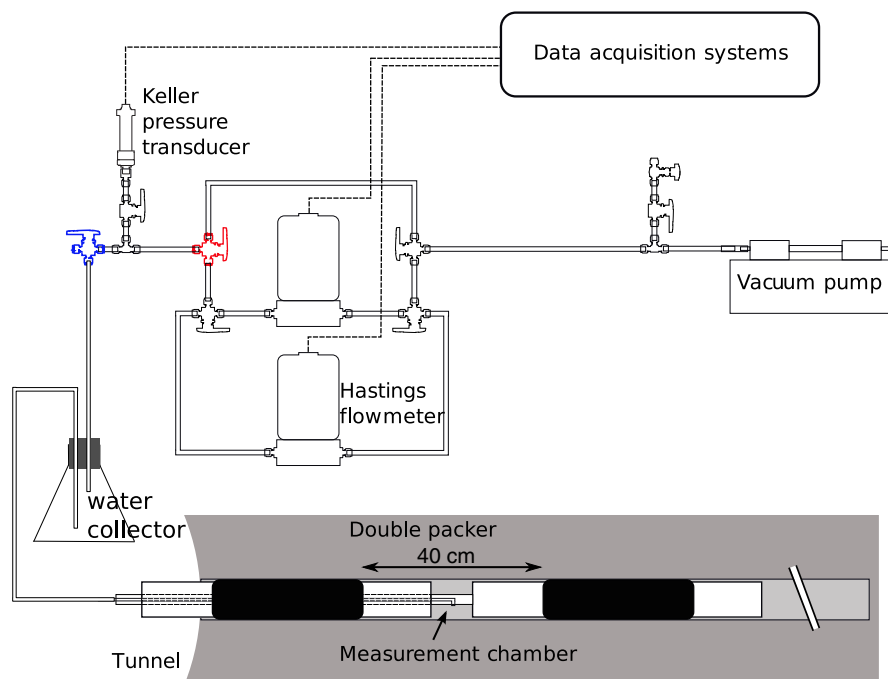


Fig. 3. Pneumatic testing system used to determine air permeability along boreholes, including a double mechanical packer, a water collector, a Keller pressure transducer and Hastings flow-meters, a vacuum pump. The natural barometric pressure recovery occurs since the evacuation is stopped, the third valve (in red) of the system is closed and the vacuum pump is turned off. The first valve (in blue) closure enables a check for possible leaks during the natural barometric pressure recovery.

Table 1
Measuring ranges and precisions of the pneumatic test and borehole pressure monitoring instruments.

Transducer	Range	Precision (%)
Pressure (Keller)	0 to 2 bar	0.15
Flow-meter (Hastings)	0 to 20 L _{STP} min ⁻¹	1
Temperature (SBE)	–5 to +35 °C	0.1
Pressure (RPT410V)	600 to 1100 mbar	0.1
Differential pressure (Furness)	±300 mmH ₂ O	1
Differential pressure (GE sensing)	±1000 Pa	0.1

leaks is also performed during this recovery (closure of the first valve, in blue, Fig. 3).

- (d) The double packer is shifted in increments of 10 cm or in increments of 20 cm when the natural barometric pressure recovery cannot be observed (permeability below the detection capability of a pneumatic test).

During the installation of the double packer, the outermost inflatable sleeve is completely inserted into the borehole to avoid any damage of the inflatable black rubber element (Fig. 3). Hence, this system does not enable measurements along the first 50 cm of the borehole. The measurement interval is indeed placed at a minimum distance of about 50 cm of the excavation wall.

The air permeability is deduced from pressure and flow rate data measured during the steady-state (Fig. 4), using the approximation described by Jakubick and Franz (1993) and Bossart et al. (2002):

$$k = \frac{Q_{sc} P_{sc} T \mu Z}{\pi h T_{sc} (P_e^2 - P_{bh}^2)} \left[\ln \left(\frac{r_e}{r_{bh}} \right) \right], \quad (1)$$

with:

- k the air permeability (m²);
- Q_{sc} the steady-state air flow at standard conditions (m³ s⁻¹);
- P_{sc} the atmospheric standard air pressure (1013 hPa);
- T the reservoir temperature (K);
- μ the air viscosity (1.810⁻⁵ Pa s);
- Z the gas deviation factor (dimensionless);
- h the measurement interval length (m);
- T_{sc} the standard temperature (288.15 K);

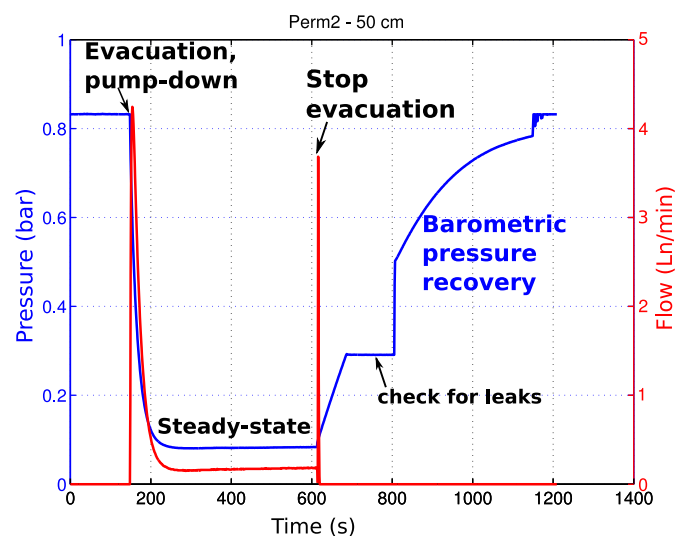


Fig. 4. Pressure (in bar) and flow (in Ln, litres normalised) response during a typical air extraction test performed in borehole Perm2 (see Fig. 2) with the interval test chamber placed at a depth of 50 cm.

- P_e the atmospheric pressure (Pa);
- P_{bh} the steady-state pressure measured in the interval chamber (Pa);
- r_e the radius of influence (m);
- r_{bh} the borehole radius (m).

One can assume the validity of the ideal gas equation of state, the gas deviation factor Z equal to 1, which is obviously the case when air is at pressures equal or inferior to atmospheric pressure. The radius of influence r_e (a measure of the drainage area), somewhat dependent on the depth of investigation within the borehole, is unknown. However, it is not a severe limitation for estimating a permeability k , since r_e appears only as a natural logarithm in the above formula. Therefore we chose a simpler approach, shifting from cylindrical to cartesian coordinates: in our approximation, the gas transfers are supposed to take place through a constant surface, i.e. the surface S of the borehole inside the measurement interval of the double packer.

Considering the error ranges of the instruments (see Table 1) and the error associated to the estimation of the length of the measurement chamber (about 2.5%), the uncertainty of the air permeability measurement system is about 4%.

When the flow rate decreases below the measurement limit, during an air extraction test, the air permeability is deduced from the very slow pressure increase following the stop of the air evacuation from the measurement chamber (Fig. 5). The air permeability is then deduced from the following expression of the Darcy's law (Laghcha, 2006) for compressible fluids (ideal gas):

$$k = \frac{2\mu L Q_{bh} P_{bh}}{S(P_{atm}^2 - P_{bh}^2)}, \quad (2)$$

with:

- k the air permeability (m²);
- μ the air viscosity (Pa s);
- L the mean path length of the gas through the rock from the tunnel to the measurement interval (m);
- Q_{bh} the air flow through the surface S of the borehole boundary (m³ s⁻¹);

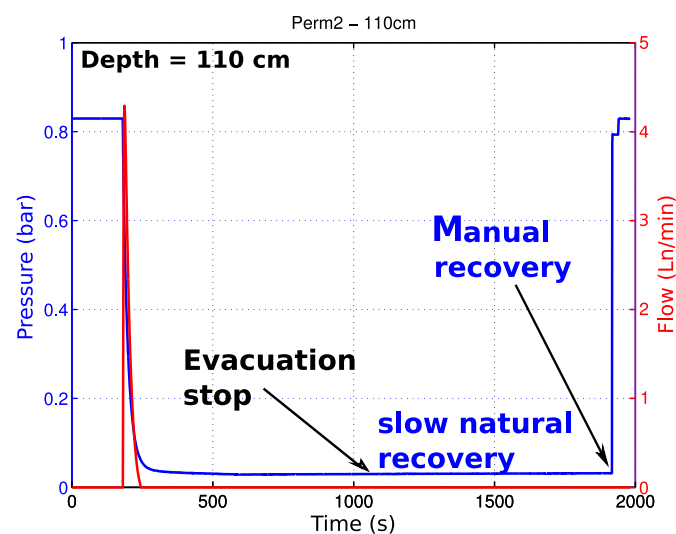


Fig. 5. Pressure and flow response during an air extraction test performed in borehole Perm2 (see Fig. 2) with the interval test placed at a depth of 110 cm. The rapid natural barometric pressure recovery did not occur. The steady-state flow was too small to be measured. The air permeability is deduced from the very slow recovery following the evacuation stop.

P_{bh}	the steady-state pressure before the stop of the evacuation (Pa);
S	the surface of the borehole inside the measurement interval ($S \approx 0.1056 \text{ m}^2$);
P_{atm}	the tunnel barometric pressure (Pa).

3.2. Borehole pressure monitoring

The borehole pressure monitoring is based on previous studies using *in situ* measurements of subsurface response to barometric pumping (Buckingham, 1904) in order to deduce pneumatic diffusivity and permeability of geological layers (Shan, 1995; Ahlers et al., 1999). A barometric signal that propagates into the subsurface will undergo a time-lag and attenuation (Ahlers et al., 1999). This time-lag and attenuation depend on the pneumatic diffusivity D_g of the penetrated subsurface layer:

$$D_g = \frac{k\bar{P}}{n_g\mu}, \quad (3)$$

with:

D_g	the pneumatic diffusivity ($\text{m}^2 \text{ s}^{-1}$);
k	the intrinsic permeability (m^2);
\bar{P}	the mean atmospheric pressure (Pa);
n_g	the drained porosity;
μ	the air viscosity (Pa s).

The pressure monitoring system was designed to follow the response of the EDZ to barometric pumping. It consists of a borehole obturated by a simple mechanical packer (Fig. 6) and barometric transducers that measures the pressure in this borehole and in the tunnel (transducers RPT410V from GE Sensing, Table 1 and Fig. 6), and the differential pressure between the borehole and the tunnel (transducer GE diff or

Furness, Table 1 and Fig. 6). The temperature was also measured into the obturated borehole and in the tunnel with high resolution SBE probe (Table 1 and Fig. 6). This temperature was constant around 6.5°C . All the pressure transducers are connected to a Hydra acquisition system that records the different pressures every 60 s. A bypass valve permitted pneumatically connecting tunnel and borehole when needed.

This pressure monitoring system has been placed into the borehole Perm1 (Fig. 2) since September 10th, 2009. It has been placed in another borehole (Perm4, Fig. 2) during eleven days in December 2009, next in the borehole Gaz2 and then, recently, in Perm2 (Fig. 2).

4. Experimental results

This section presents the results concerning:

- the estimation of the EDZ extent through drill core observation and air permeability measurements performed in three boreholes;
- the EDZ response to external solicitations monitored through pressure measurements in two boreholes.

4.1. Estimation of the EDZ extent through core observation and air permeability measurements

The results of qualitative analysis of drill cores coming from Perm2, Gaz2 and Perm4 boreholes (Fig. 7) and of the corresponding air permeability measurements (Fig. 8) are consistent for each boreholes.

Perm2 drill core (Fig. 7a) has numerous fractures (with some traces of pyrite oxidation) from the tunnel boundary (upper part on the left) to a depth of 90 cm. At a depth of 90 cm, a large quartz vein – filling a natural fracture – was encountered, causing difficulties during the borehole drilling. It is important to note that the coring machine has a total length of about 40 cm. Hence, for example, the piece of Perm2 core from the depth of 120 cm to the depth of 150 cm has nearly the maximum length that it was possible to drill in a single piece. In addition, the core extraction from the coring machine sometimes caused several additional spurious fractures. The piece of

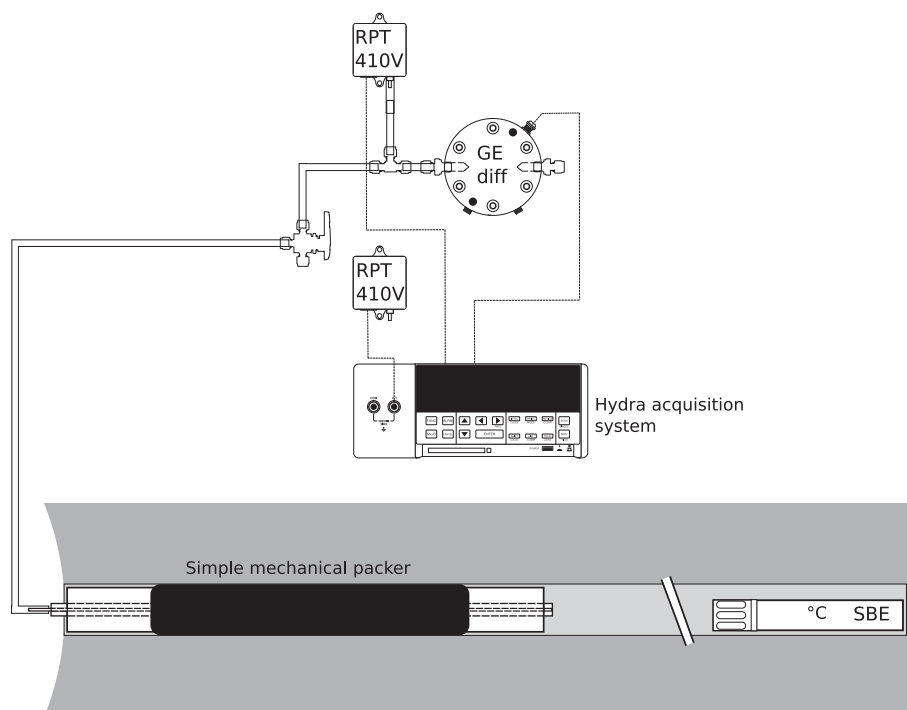


Fig. 6. Borehole pressure monitoring system including a simple mechanical packer, three barometric transducers, two of them measuring the pressure in the obturated borehole and in the tunnel (RPT410V), the third one measuring the differential pressure (GE diff or Furness transducers), high resolution temperature probe (SBE) and Hydra acquisition system.

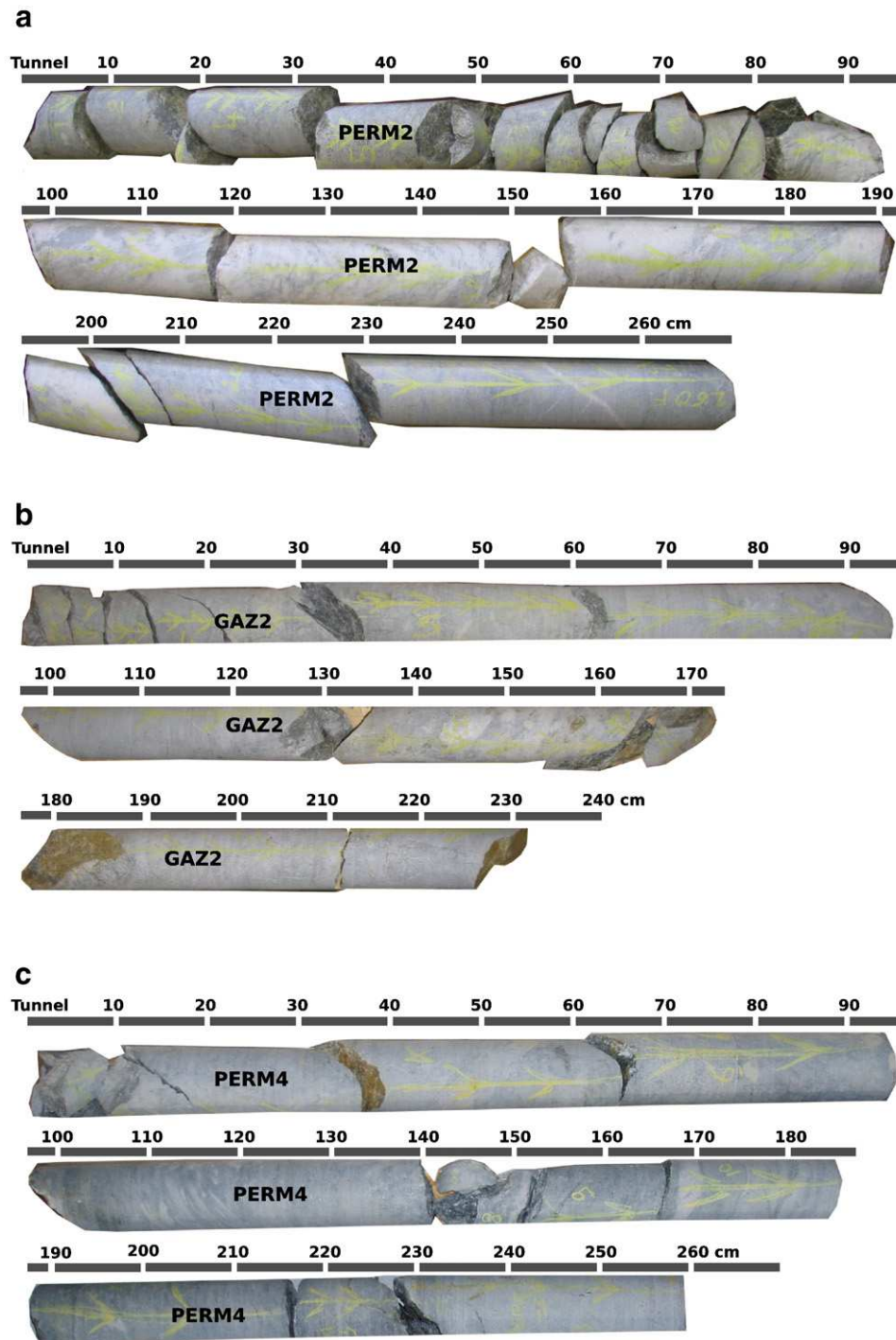


Fig. 7. Three drill cores extracted from radial boreholes in the gneissic section of the tunnel: Perm2 (a), Gaz2 (b) and Perm4 (c), Perm4 is a radial borehole located 1 m underneath Gaz2 borehole (see Fig. 2). The coring machine has a length of about 40 cm.

Perm2 core from the depth of 195 cm to the depth of 230 cm includes a natural fracture near the depth of 200 cm. The air permeability distribution along the Perm2 borehole (Fig. 8a) is consistent with the feature of the corresponding drill core (Fig. 7a). Indeed, the air permeability is higher (about 4.10^{-15} m^2) along the highly fractured part of the core from the tunnel to the depth of 100 cm than from the depth 100 cm to 200 cm. Along this last one-meter section, the steady-state flow was too small to be measured, the air permeability (deduced, in this case, from Eq. (2)) is very low (about 10^{-17} m^2) except in the vicinity of the natural fracture observed on the drill core (Fig. 7a) where the air permeability is about 2.10^{-16} m^2 .

Concerning the Gaz2 borehole, with the drill core displayed in Fig. 7b and corresponding permeability profile in Fig. 8b, a consistency is also observed between visual observations of the core and during the pneumatic test and the air permeability distribution. The air permeability is about 6.10^{-14} m^2 along the first meter of the borehole where a particular fracturing is observed on the core (Fig. 7b). The steady-state flow at 120 cm deep was too small to be measured and the slow pressure recovery (Fig. 5) did not occur, sign of a very low permeability zone where the detection limit of our system was exceeded. Deeper into Gaz2 borehole, water – probably drained by a large natural sub-horizontal fracture observed in the tunnel – came after

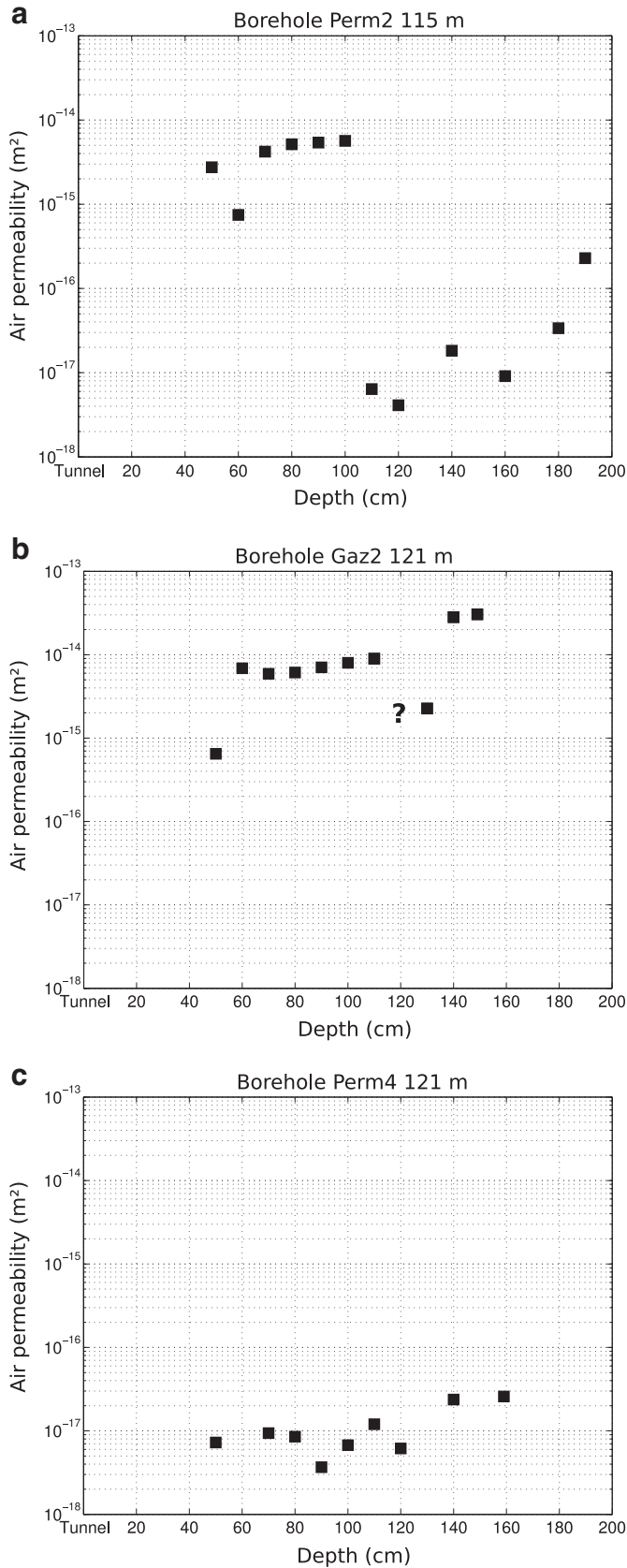


Fig. 8. Air permeability profiles along boreholes Perm2 (a), Gaz2 (b) and Perm4 (c), located near the end of the Roselend tunnel (gneissic section). Perm4 is a radial borehole located 1 m underneath the borehole Gaz2 (see Fig. 2).

each air extraction test during the packer deflation. Along this deeper section, air permeability increases from $2 \cdot 10^{-15}$ m² to $3 \cdot 10^{-14}$ m² (Fig. 8b).

Drill cores from borehole Perm4 exhibit a very low fracture density (Fig. 7c). Moreover, it appears to be cut in pieces with length corresponding to the coring machine dimension. Fractures are localized near the tunnel boundary (Fig. 8c, upper left part) and in the vicinity of the 150th cm of the drill core (Fig. 7c). The permeability profile is deduced from Eq. (2) (Fig. 7c), the permeability is particularly low along this borehole. The air permeability is about 10^{-17} m² from the tunnel boundary to the depth of 120 cm, it slightly increases at 150 cm deep (Fig. 8c).

For each borehole, we observed a consistency between the direct observations of the drilled cores and the air permeability profiles deduced from pneumatic tests. Along Gaz2 and Perm2 radial boreholes, a section from the tunnel boundary to a depth of about 1 m exhibits high permeability values in agreement with the presence of numerous fractures. We suppose that this fractured borehole section corresponds to the EDZ due to the excavation method – by blasting – of the Roselend tunnel. The permeability profiles are typical of excavated crystalline rock mass (Jakubick and Franz, 1993), with permeability heterogeneities along the borehole due to natural fractures. The EDZ extent is estimated to about 1 m around the tunnel i.e., one radius. Even though, the EDZ of the Roselend tunnel is heterogeneous. Indeed, the borehole Perm4 (Figs. 2, 7c and 8c) does not display a noticeable EDZ.

4.2. Monitoring of the EDZ short-term evolution: preliminary results

The borehole pressure monitoring enables to follow the response of the EDZ to barometric pumping and hence the potential changes of the pneumatic diffusivity of the EDZ under external forces due to the lake level variations.

The pressure variations in the borehole and in the tunnel seem to be similar (Fig. 9a). Upon close inspection, the borehole pressure signal (green curve) has a time-lag of about 6 h compared to the pressure in the tunnel (blue curve, Fig. 9b). This time-lag corresponds to the propagation time of the barometric signal, through the fractured rock mass, from the tunnel atmosphere to the obturated borehole (during the short measurement period corresponding to the enlargement). In addition, this propagation path through the fractured rock mass induces the attenuation of high frequency content of the barometric signal (Fig. 9b). Time-lag and attenuation changes with time, if any, could be due to an evolution with time of the pneumatic diffusivity of the fractured rock mass, and provide a means for monitoring the evolution of the EDZ.

The one-dimensional diffusion equation for a gas flow along the x -axis reads

$$\frac{\partial P}{\partial t} = D_g \frac{\partial^2 P}{\partial x^2}, \quad (4)$$

with D_g , the pneumatic diffusivity ($\text{m}^2 \text{s}^{-1}$), (Eq. (3)).

For a periodic flow from the surface ($x=0$) in a half-space, the steady-state solution of Eq. (4), for a surface pressure with an amplitude P_0 and a period $T = \frac{2\pi}{\omega}$, has the following expression, formally equivalent to the solution of the heat equation (Goguel, 1975):

$$P(x, t) = P_0 \exp\left(-x \sqrt{\frac{\omega}{2D_g}}\right) \sin\left(\omega t - x \sqrt{\frac{\omega}{2D_g}}\right), \quad (5)$$

where

$$a(x) = \exp\left(-x \sqrt{\frac{\omega}{2D_g}}\right), \quad (6)$$

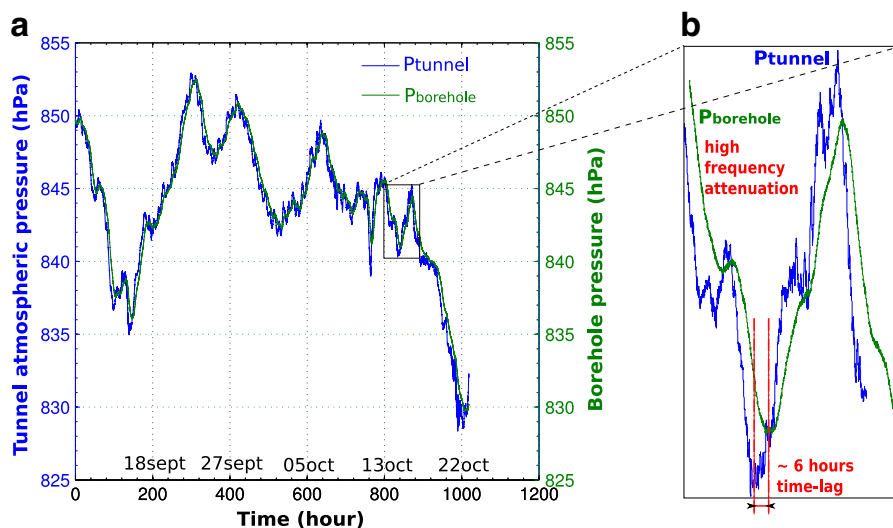


Fig. 9. a) Perm1 borehole and tunnel atmospheric pressure variations with time recorded from September 10th, 2009 to October 23rd, 2009. b) Enlargement of the pressure curves around the October 15th, 2009.

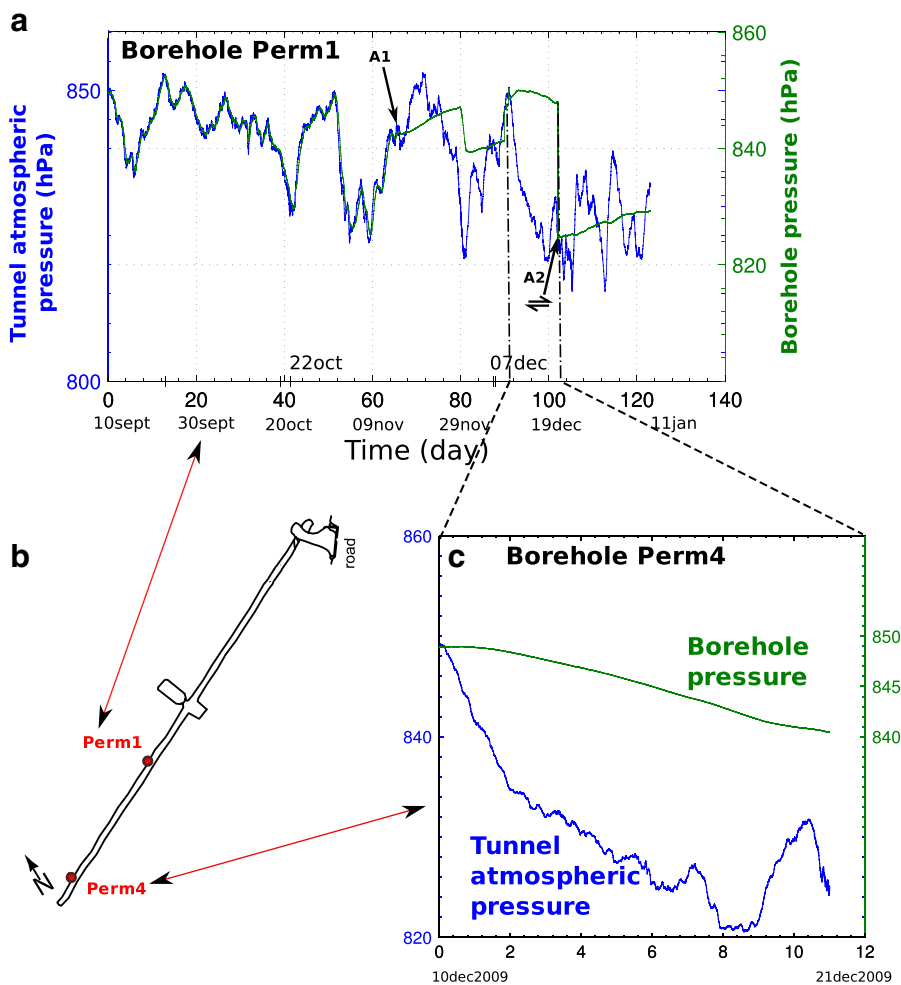


Fig. 10. a) Perm1 borehole and tunnel atmospheric pressure variations with time recorded from September 2009 to January 2010. b) Map of the emplacements of the instrumented boreholes Perm1 (75 m) and Perm4 (125 m) along the tunnel. c) Perm4 borehole and tunnel atmospheric pressure variations with time recorded from December 10th, 2009 to December 21st, 2009.

and

$$\phi(x) = x \sqrt{\frac{\omega}{2D_g}}, \quad (7)$$

are the amplitude reduction and phase shift at point x , respectively. Considering a mean periodicity of atmospheric depressions about six days (Pommier, 2005), a penetration depth of about 1 m, a drained porosity of about 5%, and a time-lag of the borehole pressure signal $\tau = \phi(\frac{L}{2\pi})$ of about 6 h (Fig. 9b) yields an air permeability of about $3 \cdot 10^{-16} \text{ m}^2$. This estimate compares favourably with our direct measurements in this section of the tunnel (borehole Perm1, Fig. 2).

Whereas the identification of potential time-lag and attenuation variations needs further investigations, the visual analysis of the long period of measurements in borehole Perm1 displayed in Fig. 10a points out a particular gap occurring between the borehole pressure and the tunnel pressure (see the first black arrow A1). Indeed, the borehole pressure increased in a regular way, decreased suddenly and increased again. Note that the second decrease is an artefact (see the second black arrow A2, Fig. 10a) caused by the opening of the valve (Fig. 6) to avoid an out of range differential pressure measurement that would have damaged the transducer. Hence, the borehole pressure curve (green curve) has been shifted down after the valve was opened. The measurements performed during a short period in the borehole Perm4 (see Fig. 10b for borehole situations in the tunnel) are presented in Fig. 10c. The Perm4 borehole pressure signal variations are quite similar to those recorded in Perm1 borehole during the same time period (from December 10th, 2009 to December 21st, 2009), showing that this particular borehole pressure behaviour not only concerns a local section of the tunnel, but probably, the whole fractured rock mass. This pressure increase could be due to percolating water during successive snow and thawing periods as observed in the Roselend field during our measurements in winter time.

5. Conclusion and perspectives

Distribution of air permeability along radial boreholes and visual observations of drill cores show a noticeable consistency. The permeability measurements in three boreholes enable, in a very preliminary way, the delineation of the EDZ at about 1 m around the Roselend tunnel. This EDZ seems to be heterogeneous as it was previously described around excavations in fractured crystalline rock mass (Jakubick and Franz, 1993). It will be thus necessary to perform numerous pneumatic tests in radial boreholes like Bossart et al. (2004) in order to better constrain the extent of the EDZ and its geometry along the tunnel. The permeability deduced from the air extraction tests is an apparent equivalent permeability, at the scale of our measurements. It is consistent with the permeability of the Roselend URL rock mass, $2 \cdot 10^{-13}$ to $3 \cdot 10^{-14} \text{ m}^2$, deduced from an assessment of the hydraulic conductivity (Patriarche et al., 2007), and within the range of permeabilities of crystalline rocks, including gneiss (Brace, 1984).

The response of the EDZ to barometric pumping has been observed at a metric scale. The pressure signal in boreholes presents a time-lag and attenuation in a similar way to the observation, at a larger scale, of Ahlers et al. (1999) in hundred meters long sub-vertical boreholes in Yucca Mountain fractured rock mass. Further signal analyses need to be conducted in order to quantify precisely this time-lag and attenuation and to check potential changes with time. Indeed, time-lag and attenuation changes could be due to variations with time of the pneumatic diffusivity of the fractured rock mass in response to external solicitations such as lake level variations or water percolation. Hydro-mechanical modelling will then be performed to quantify the mechanical or hydraulic responses of the excavated and fractured

Mérais rock mass to the lake level variations. Correlation between borehole pressure variations, time-lag and attenuation, and further quantities such as deformation, radon activity concentration, and acoustic emission measurements are now being investigated.

Acknowledgements

The authors wish to thank Geosciences Master students from ENS (Paris) that actively participated to the first tests of the permeability measurement system in September 2009, Bertrand Menotto who performed the borehole drilling whatever the climatic conditions, Patrick Carrera for his assistance to reach the tunnel entrance during winter 2009–10. We thank Beaufort County for authorizing our access to the tunnel.

References

- Ahlers, C., Finsterle, S., Bodvarsson, G., 1999. Characterization and prediction of sub-surface pneumatic response at Yucca Mountain, Nevada. *Journal of Contaminant Hydrology* 38 (1–3), 47–68.
- Alheid, H., Knecht, M., Ludeking, R., 1996. Investigation of the long-term development of damaged zones around underground openings in rock salt. *International Journal of Rock Mechanics and Mining Sciences and Geomechanics Abstracts*, vol. 35. Elsevier, pp. 589–590.
- Bossart, P., Meier, P., Moeri, A., Trick, T., Mayor, J., 2002. Geological and hydraulic characterisation of the excavation disturbed zone in the Opalinus Clay of the Mont Terri Rock Laboratory. *Engineering Geology* 66 (1–2), 19–38.
- Bossart, P., Trick, T., Meier, P., Mayor, J., 2004. Structural and hydrogeological characterisation of the excavation-disturbed zone in the Opalinus Clay (Mont Terri Project, Switzerland). *Applied Clay Science* 26 (1–4), 429–448.
- Brace, W., 1984. Permeability of crystalline rocks: new in situ measurements. *Journal of Geophysical Research* 89 (B6), 4327–4330.
- Buckingham, E., 1904. Contribution to Our Knowledge of the Aeration of Soils, 25. Bureau of Soils, U.S. Department of Agriculture.
- Cabrera, J., Volant, P., Baker, C., Pettitt, W., Young, R., 1999. Structural and geophysical investigations in the EDZ (Excavation Disturbed Zone) in indurated argillaceous media: the tunnel and galleries of the IPSN Tournemire site, France. 37 th US Rock Mechanics Symposium, Vail Balkema, pp. 957–964.
- Cai, M., Kaiser, P., Martin, C., 2001. Quantification of rock mass damage in underground excavations from microseismic event monitoring. *International Journal of Rock Mechanics and Mining Sciences* 38 (8), 1135–1145.
- Cosma, C., Olsson, O., Keskinen, J., Heikkinen, P., 2001. Seismic characterization of fracturing at the Äspö Hard Rock Laboratory, Sweden, from the kilometer scale to the meter scale. *International Journal of Rock Mechanics and Mining Sciences* 38 (6), 859–865.
- Dezayes, D., Villemain, V., Richon, P., Pili, E., 2003. Fracture pattern in a gneiss complex and its relationship with present-day fluid circulations in the Roselend underground gallery (French Alps). *EGS-AGU-EUG Joint Assembly*, p. 3979.
- Falls, S., Young, R., 1998. Acoustic emission and ultrasonic-velocity methods used to characterise the excavation disturbance associated with deep tunnels in hard rock. *Tectonophysics* 289 (1–3), 1–15.
- Gibert, D., Nicollin, F., Kergosien, B., Bossart, P., Nussbaum, C., Grislin-Mouézy, A., Conil, F., Hoteit, N., 2006. Electrical tomography monitoring of the excavation damaged zone of the Gallery 04 in the Mont Terri rock laboratory: field experiments, modelling, and relationship with structural geology. *Applied Clay Science* 33 (1), 21–34.
- Goguel, J., 1975. La géothermie. Doin, 171 pp.
- Jakubick, A., Franz, T., 1993. Vacuum testing of the permeability of the excavation damaged zone. *Rock Mechanics and Rock Engineering* 26 (2), 165–182.
- Kwon, S., Lee, C., Cho, S., Jeon, S., Cho, W., 2009. An investigation of the excavation damaged zone at the KAERI underground research tunnel. *Tunnelling and Underground Space Technology* 24 (1), 1–13.
- Lagha, A., 2006. Contribution à l'étude des transferts gazeux et liquide au sein des parois en béton endommagées sous sollicitation thermo-hydrrique. PhD thesis, INSA de Lyon, France, 212 pp.
- Malmgren, L., Saiani, D., Töyrä, J., Bodare, A., 2007. The excavation disturbed zone (EDZ) at Kiirunavaara mine, Sweden — by seismic measurements. *Journal of Applied Geophysics* 61 (1), 1–15.
- Martin, C., Read, R., Martino, J., 1997. Observations of brittle failure around a circular test tunnel. *International Journal of Rock Mechanics and Mining Sciences and Geomechanics Abstracts*, vol. 34. Elsevier, pp. 1065–1073.
- Martino, J., Chandler, N., 2004. Excavation-induced damage studies at the underground research laboratory. *International Journal of Rock Mechanics and Mining Sciences* 41 (8), 1413–1426.
- Matray, J., Savoye, S., Cabrera, J., 2007. Desaturation and structure relationships around drifts excavated in the well-compacted Tournemire's argillite (Aveyron, France). *Engineering Geology* 90 (1–2), 1–16.
- Nicollin, F., Gibert, D., Bossart, P., Nussbaum, C., Guervilly, C., 2008. Seismic tomography of the Excavation Damaged Zone of the Gallery 04 in the Mont Terri Rock Laboratory. *Geophysical Journal International* 172 (1), 226–239.

- Nicollin, F., Gibert, D., Lesparre, N., Nussbaum, C., 2010. Anisotropy of electrical conductivity of the excavation damaged zone in the Mont Terri Underground Rock Laboratory. *Geophysical Journal International* 181, 303–320.
- Patriarche, D., Pili, E., Adler, P., Thovert, J., 2007. Stereological analysis of fractures in the Roselend tunnel and permeability determination. *Water Resources Research* 43 (9), W09421.
- Pili, E., Richon, P., Moreira, M., Agrinier, P., Sabroux, J., Adler, P., 2008. The Roselend-Gas Project: research on solicitation effects in a large-scale experiment under natural dynamics with gas. AGU Fall Meeting Abstracts, p. 1000.
- Pommier, A., 2005. Analyse objective de la dynamique aérologique de basses couches dans l'espace Atlantique Nord: mécanismes et évolution de 1950 à 2000. PhD thesis, Univ., LCRE, Lyon. cf. www.lcre.univ-lyon3.fr/climato.
- Provost, A., Richon, P., Pili, E., Perrier, F., Bureau, S., 2004. Fractured porous media under influence: the Roselend experiment. *Eos* 85, 113–124.
- Sato, T., Kikuchi, T., Sugihara, K., 2000. In-situ experiments on an excavation disturbed zone induced by mechanical excavation in Neogene sedimentary rock at Tono mine, central Japan. *Engineering geology* 56 (1–2), 97–108.
- Shan, C., 1995. Analytical solutions for determining vertical air permeability in unsaturated soils. *Water Resources Research* 31 (9), 2193–2200.
- Shao, H., Schuster, K., Sönnke, J., Bräuer, V., 2008. EDZ development in indurated clay formations – in situ borehole measurements and coupled HM modelling. *Physics and Chemistry of the Earth, Parts A/B/C* 33, S388–S395.
- Sheng, Q., Yue, Z., Lee, C., Tham, L., Zhou, H., 2002. Estimating the excavation disturbed zone in the permanent shiplock slopes of the Three Gorges Project, China. *International Journal of Rock Mechanics and Mining Sciences* 39 (2), 165–184.
- Souley, M., Homand, F., Pepa, S., Hoxha, D., 2001. Damage-induced permeability changes in granite: a case example at the URL in Canada. *International Journal of Rock Mechanics and Mining Sciences* 38 (2), 297–310.
- Trique, M., Richon, P., Perrier, F., Avouac, J., Sabroux, J., 1999. Radon emanation and electric potential variations associated with transient deformation near reservoir lakes. *Nature* 399, 137–141.
- Wright, C., Walls, E., et al., 2000. The seismic velocity distribution in the vicinity of a mine tunnel at Thabazimbi, South Africa. *Journal of Applied Geophysics* 44 (4), 369–382.

B Solution analytique 1D pour un test d'injection pneumatique

On considère un test d'injection d'air dans la chambre isolée ou dans un intervalle de forage délimité par 2 obturateurs gonflables ou par 1 obturateur et le fond du forage. Dans la première partie du test, un état stationnaire est établi, avec un débit d'injection d'air et une pression constants. Dans la seconde partie, l'injection d'air est stoppée et la pression dans la chambre ou le forage décroît.

B.1 État stationnaire

Dans le cas stationnaire et en supposant que l'écoulement a une symétrie radiale autour de la chambre, le profil de pression est régi par l'équation :

$$\nabla \cdot (\rho \cdot \mathbf{v}) = 0 \quad (1)$$

d'où

$$\nabla \cdot \left(\frac{dP^2}{dr} \right) = 0 \quad (2)$$

soit

$$\frac{d^2 P^2}{dr^2} + \frac{1}{r} \frac{dP^2}{dr} = 0 \quad (3)$$

Les conditions aux limites sont les suivantes :

$$q_{ss} = (2\pi RL) \frac{k}{\mu} \left(\frac{dP}{dr} \right)_R \quad (4)$$

et

$$P(R) = P_{ss} \quad , \quad P(R_e) = P_0 \quad (5)$$

où q_{ss} est le débit d'injection d'air dans les conditions standards de pression et de température (en $\text{m}^3 \cdot \text{s}^{-1}$), P_{ss} (resp. P_0) la pression (en Pa) dans la chambre ou le forage à l'état stationnaire (resp. la pression atmosphérique moyenne à l'altitude considérée), L la longueur de la chambre ou de l'intervalle d'injection (en m), R le rayon du forage (en m) et R_e le rayon d'influence (en m), distance à laquelle la pression P_0 n'est pas modifiée par l'injection d'air. Comme expliqué dans Guillon *et al.* (2013), le rayon d'influence est supposé égal à L , soit 20 m dans le cas de la chambre. La Figure B.1 représente les paramètres et les conditions aux limites.

La résolution de l'équation différentielle 3 permet de déterminer la pression dans la chambre :

$$P_{ss}^2 - P_0^2 = \frac{P_{ss} q_{ss} \mu}{\pi k L} \ln \left(\frac{R_e}{R} \right) \quad (6)$$

La relation ci-dessus permet de déduire la formule donnant la perméabilité utilisée dans Guillon *et al.* (2013) et Wassermann *et al.* (2011), ainsi que la relation entre la pression à l'état stationnaire et la perméabilité, représentée en Figure 2.5.

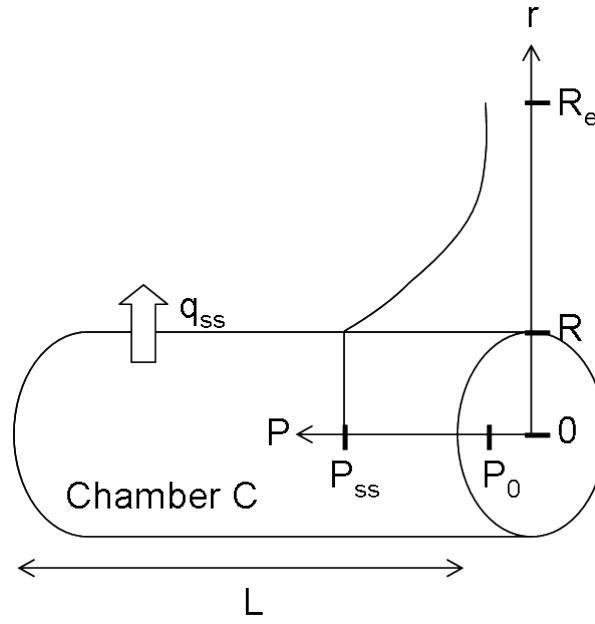


FIGURE B.1 – Schéma du modèle 1D radial utilisé pour l'état stationnaire du test d'injection pneumatique dans la chambre C. Les paramètres et conditions aux limites utilisés dans le modèle sont indiqués, ainsi que l'évolution spatiale de la pression dans la milieu poreux.

FIGURE B.1 – Diagram of the 1D radial model used for steady state of pneumatic injection test. The parameters and boundary conditions are represented, as well as spatial evolution of the pressure in the porous medium.

B.2 Évolution transitoire

En supposant que la pression varie peu autour de sa valeur moyenne (ce qui revient à négliger la compressibilité de l'air), l'équation différentielle qui contrôle la pression est l'équation de diffusion :

$$\frac{\partial P}{\partial t} = D \frac{\partial^2 P}{\partial z^2} \quad (7)$$

où le coefficient de diffusivité pneumatique D (en $\text{m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$) s'exprime en fonction de la perméabilité à l'air k (en m^2), de la pression moyenne P_0 (en Pa), de la viscosité dynamique de l'air μ (en Pa.s) et de la porosité à l'air ϕ :

$$D = \frac{kP_0}{\mu\phi} \quad (8)$$

Contrairement à ce qui précède, on considère ici un modèle 1D vertical de longueur finie R_e , pour lequel on peut trouver des solutions analytiques à l'équation 7 pour le problème qui nous intéresse ici. La condition initiale est donnée par la pression dans la chambre :

$$P(x = 0, t = 0) = P_{ss} \quad (9)$$

Les conditions aux limites sont données par un flux nul au niveau de la chambre ou du forage :

$$\frac{\partial P}{\partial x}(x = 0, t) = 0 \quad (10)$$

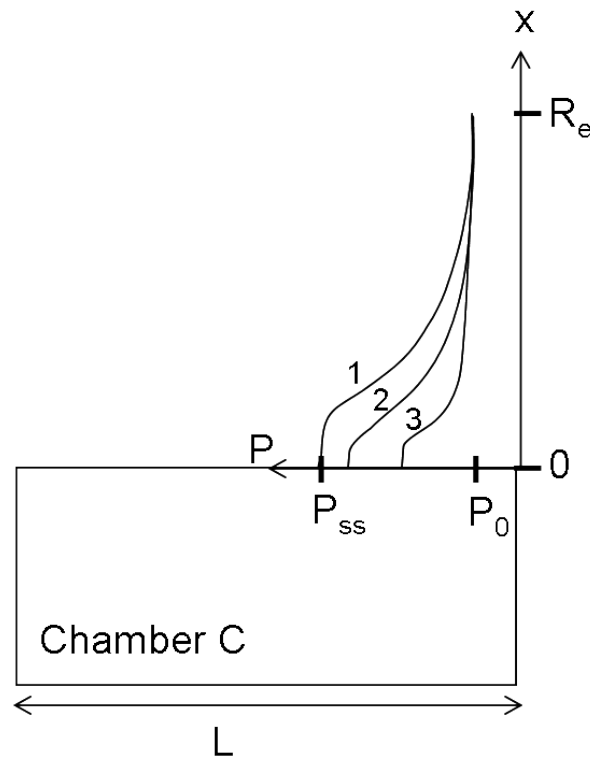


FIGURE B.2 – Schéma du modèle 1D vertical utilisé pour la période transitoire de décroissance de pression d'un test d'injection pneumatique dans la chambre C. Les paramètres et conditions aux limites utilisés dans le modèle sont indiqués, ainsi que l'évolution spatiale de la pression dans la milieu poreux à trois instants successifs 1, 2 et 3.

FIGURE B.2 – Diagram of the 1D vertical model used for the transient pressure decrease of a pneumatic injection test in chamber C. The parameters and boundary conditions are represented, as well as spatial evolution of the pressure in the porous medium at three successive times 1, 2 and 3.

et la pression atmosphérique moyenne P_0 à la distance R_e de la zone d'injection :

$$P(x = R_e, t) = P_0 \quad (11)$$

Le modèle et les conditions aux limites sont représentés en Figure B.2 L'équation de diffusion est résolue en utilisant la méthode de séparation des variables. La solution s'exprime sous la forme d'une somme de série :

$$P(x, t) = P_0 + \sum_{n=0}^{+\infty} A_n \cos\left(\frac{\pi}{2H}(2n+1)x\right) e^{-D \frac{\pi^2}{4H^2}(2n+1)^2 t} \quad (12)$$

avec

$$\sum_{n=0}^{+\infty} A_n = P_{ss} - P_0 \quad (13)$$

En ne conservant que le premier terme de la série, on a une bonne approximation de l'évolution de la pression. On peut alors obtenir une expression analytique de la

décroissance de la pression dans la chambre :

$$P(x = 0, t) = P_0 + (P_{ss} - P_0) e^{-D \frac{\pi^2}{4H^2} t} \quad (14)$$

La relation ci-dessus permet de reproduire les mesures réalisées dans la chambre après l'arrêt de l'injection d'air (Figure 2.3).

C Solution analytique 1D pour la diffusion d'une onde de pression sinusoïdale

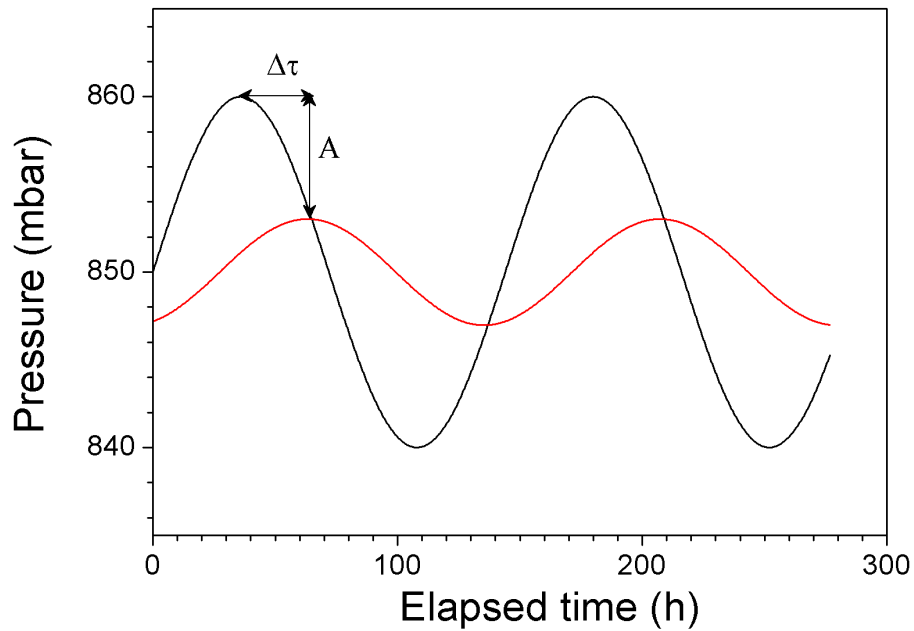


FIGURE C.1 – Pression calculée dans un modèle 1D vertical à 50 m de profondeur dans une roche poreuse (rouge) en réponse à la diffusion d'une onde de pression sinusoïdale en surface (noir). Le déphasage $\Delta\tau$ et l'atténuation A sont représentés.

FIGURE C.1 – Pressure calculated for a 1D vertical model at 50 m depth in a porous rock (red) in response to the diffusion of a sinusoidal pressure wave at the surface (black). Time lag $\Delta\tau$ and amplitude attenuation A are shown.

Dans un modèle 1D vertical semi infini, on considère l'écoulement de l'air par advection entre la surface et la chambre C. L'axe vertical z est défini positif vers le bas. En supposant que les variations de pression sont faibles, la pression est régie par l'équation de diffusion (Équation 7).

En surface, on considère une variation sinusoïdale de la pression atmosphérique, d'amplitude ΔP et de période $T=2\pi/\omega$ (en s) :

$$P_{atm}(t) = P_0 + \Delta P \sin(\omega t) \quad (15)$$

La variation de la pression à une profondeur z est alors donnée par :

$$P(z, t) = P_0 + \Delta P \times e^{-z\sqrt{\frac{\omega}{2D}}} \times \sin(\omega t - z\sqrt{\frac{\omega}{2D}}) \quad (16)$$

Les fluctuations de pression en surface et en profondeur sont représentées en Figure C.1. L'onde de pression en profondeur est harmonique à la fréquence de l'onde de surface, avec une amplitude moindre et un retard de phase. L'atténuation d'amplitude A (sans unité) à la profondeur z est donnée par :

$$A(z) = e^{-z\sqrt{\frac{\omega}{2D}}} \quad (17)$$

et le déphasage $\Delta\tau$ (en s) par :

$$\Delta\tau(z) = z\sqrt{\frac{1}{2\omega D}} \quad (18)$$

La fréquence de coupure ω_c est définie comme la fréquence à laquelle l'atténuation est égale à $\sqrt{1/2}$, et vaut donc, à une profondeur z donnée :

$$\omega_c(z) = \left(\frac{\ln(2)}{2z}\right)^2 \cdot 2D \quad (19)$$

D Perméabilité équivalente d'un milieu hétérogène constitué de plusieurs couches horizontales

Soit un milieu hétérogène constitué de 2 couches horizontales d'épaisseur z_1 et z_2 , de perméabilités différentes k_1 et k_2 (Figure D.1). On cherche à exprimer la perméabilité k_{eq} du milieu homogène équivalent d'épaisseur Z ($Z = z_1 + z_2$), c'est-à-dire la perméabilité pour laquelle une différence de pression totale $P_2 - P_0$ entraîne le même débit d'air q que dans le cas hétérogène. La définition de la perméabilité équivalente et les différentes notations sont présentées en Figure D.1.

Dans le cas hétérogène et à l'état stationnaire, le débit d'air q est conservé dans le milieu. La loi de Darcy s'écrit dans chacun des milieux :

$$q = S \frac{k_1}{\mu} \frac{P_1 - P_0}{z_1} = S \frac{k_2}{\mu} \frac{P_2 - P_1}{z_2} \quad (20)$$

où S est la surface horizontale par laquelle se fait l'écoulement d'air. Dans le milieu homogène équivalent, la loi de Darcy s'écrit :

$$q = S \frac{k_{eq}}{\mu} \frac{P_2 - P_0}{Z} \quad (21)$$

La différence de pression totale se décompose en :

$$P_2 - P_0 = (P_2 - P_1) + (P_1 - P_0) \quad (22)$$

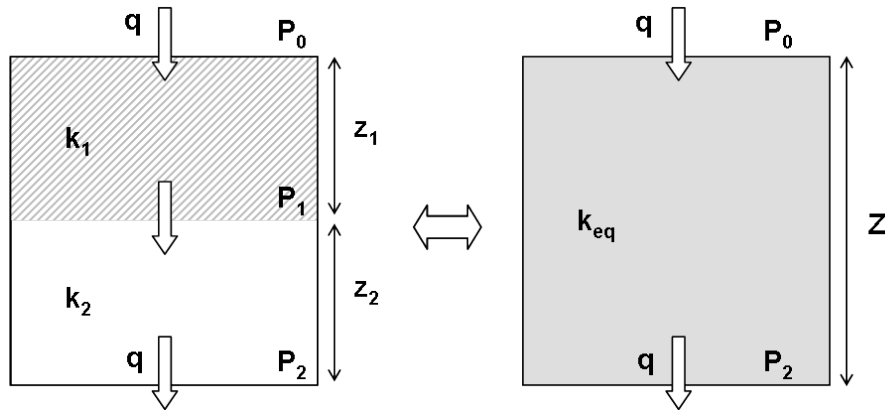


FIGURE D.1 – Milieu hétérogène constitué de 2 couches de perméabilités différentes k_1 et k_2 , et milieu homogène équivalent. La perméabilité équivalente k_{eq} est déterminée en fonction des perméabilités et des épaisseurs des 2 couches par l'Équation 24.

FIGURE D.1 – *Heterogeneous medium with 2 layers of permeabilities k_1 and k_2 , and equivalent homogeneous medium. The equivalent permeability k_{eq} is determined by the permeabilities and thicknesses of the 2 layers from Equation 24.*

En utilisant les Équations 20 et 21, on obtient :

$$\frac{q \mu Z}{S k_{eq}} = \frac{q \mu z_2}{S k_2} + \frac{q \mu z_1}{S k_1} \quad (23)$$

ce qui donne, après simplification, l'Équation suivante :

$$\frac{Z}{k_{eq}} = \frac{z_1}{k_1} + \frac{z_2}{k_2} \quad (24)$$

E Moyens analytiques de mesure des différents gaz

E.1 Spectrométrie alpha

La mesure de l'activité volumique du ^{222}Rn dans l'air, exprimée en $\text{Bq} \cdot \text{m}^{-3}$, est réalisée par spectrométrie alpha. Dans le cadre de cette thèse, j'ai utilisé deux instruments, qui sont présentés ci-dessous.

Le suivi continu dans la chambre, le tunnel et les différents forages est réalisé avec des capteurs BMC2 (Balise de mesure du RAdon dans les SOLs, MultiCapteurs, Algade). Ces instruments ont un encombrement réduit (cylindre de 50 cm de long et 6,2 cm de diamètre), une autonomie de 1 an et leur robustesse leur permet d'être installés dans des environnements humides et froids.

La mesure de l'activité volumique est basée sur un comptage des émissions alpha typiques de la désintégration du radon, entre 0,7 et 6,1 MeV. Cette mesure est réalisée par un détecteur silicium passivé et implanté, qui compte toutes les désintégrations alpha ayant lieu dans une ogive délimitant le volume de détection. La présence d'un filtre en papier à l'entrée de ce volume de détection ainsi que la discrimination en énergie du

détecteur permet de s'affranchir des descendants du radon, ^{214}Po , ^{212}Po et ^{210}Po , des poussières radioactives à vie longue. Avec le pas de mesure de 1 heure qui est utilisé, la sensibilité est de 50 Bq/m³.

Pour les suivis plus ponctuels lors des mesures de flux, un AlphaGuard (Saphymo) est utilisé, qui a une sensibilité inférieure à 5 Bq/m³, meilleure que celle des BMC2. Cet appareil est cependant plus onéreux, plus fragile et présente une autonomie en mémoire et en énergie moins élevée. La mesure des désintégrations alpha, discriminée en énergie, est réalisée dans une chambre d'ionisation polarisée avec une haute tension. A l'entrée de la chambre de mesure, un filtre en fibre de verre bloque les descendants solides du radon. Le renouvellement de l'air dans la chambre d'ionisation peut se faire soit par simple diffusion, soit à l'aide d'une pompe de circulation, ce qui permet d'avoir une meilleure résolution temporelle (10 min au lieu de 1 h).

Ces deux instruments sont calibrés en usine lors de l'achat, et cette calibration peut être conservée pendant plusieurs années. Elle est régulièrement vérifiée par intercomparaison entre plusieurs instruments.

E.2 Spectrométrie de masse

E.2.1 Spectrométrie de masse GC-IRMS : isotopes stables du carbone du CO_2 de l'air

La mesure de la composition isotopique du carbone ($\delta^{13}\text{C}$) du CO_2 de l'air a été réalisée au Laboratoire de Géochimie des Isotopes Stables (IPG Paris). L'analyse est réalisée sur des échantillons d'air non purifiés, prélevés dans des tubes Exetainer (volume 12 mL, fermeture par un bouchon équipé d'un septum). Du fait de l'altitude du Laboratoire Naturel de Roselend (1 600 m), les échantillons doivent y être prélevés en légère surpression pour ne pas se retrouver en dépression à Paris.

Une première phase de purification est réalisée avec le Gas Bench II (Thermo Scientific). Il s'agit d'une chromatographie en phase gazeuse, dont le gaz vecteur est l'hélium, et qui sépare le pic de l'air (N_2 et O_2) de celui du CO_2 . Seul le pic de CO_2 est introduit dans la source du spectromètre de masse à secteur magnétique multicollection (DeltaPlus XP, Thermo Scientific). Le gaz y est ionisé par impact électronique, les ions produits sont extraits et séparés selon leurs masses, puis détectés par des cages de Faraday. La précision obtenue est généralement inférieure à 0,1 ‰. Cette méthode permet d'analyser environ 20 à 30 échantillons par jour. Un logiciel corrige de la présence de N_2O , qui est élué en même temps que le CO_2 et qui interfère sur les masses 44 et 45, en supposant que sa concentration et sa composition isotopique sont fixes.

Les mesures brutes sont obtenues à partir du rapport des aires des pics aux masses 45 et 44. Des standards de calcite, de composition isotopique connue, sont également analysés avec les échantillons. Leurs mesures sont ensuite utilisées pour corriger des effets de non linéarité et pour calibrer les résultats dans l'échelle internationale V-PDB.

La préparation des standards de CO_2 gazeux à partir des standards de calcite consiste à introduire une quantité connue de poudre de calcite (typiquement entre 0,1 et 0,7 mg) dans le tube Exetainer, à purger le tube avec de l'hélium puis à y introduire 15 gouttes d'acide phosphorique. Les tubes sont ensuite mis en agitation pendant 4 h à 25°C, pour

que la dissolution de la calcite soit totale et qu'il n'y ait pas de fractionnement isotopique du carbone.

E.2.2 Spectrométrie de masse à secteur magnétique haute résolution avec ligne de purification : isotopes de l'hélium

Les concentrations élémentaires et isotopiques (^3He et ^4He , encore appelées abondances) de l'hélium des échantillons de gaz ont été mesurées par spectrométrie de masse au Laboratoire Géochimie & Cosmochimie (IPG Paris) par Claire Gréau. Les quantités de matière nécessaires pour la mesure sont très faibles, et les échantillons d'air ont été prélevés dans des cylindres de 10 mL en inox, munis de 2 vannes à soufflet étanches à l'hélium (Swagelok).

La première étape est la purification des gaz rares, avec élimination notamment de N_2 , O_2 , H_2O , CO_2 sur une ligne sous ultra-vide, comportant une succession de pièges (fours à titane, pièges à hydrogène, tête froide) (Gréau, 2012). Les abondances en He et Ne sont alors mesurées sur un spectromètre de masse quadripolaire (QMS200, Pfeiffer) couplé à la ligne de purification. Le gaz est ensuite piégé sur une tête froide, dont la température est régulée pour retenir le néon et ne dégager que l'hélium, qui est dirigé en mode statique sur un spectromètre de masse à secteur magnétique à haute résolution (Noblesse, Nu Instruments). A la masse 3, le pic de l'hélium-3, ainsi que celui, distinct, de l'hydrogène deutéré ($^1\text{H}^2\text{H}$), sont mesurés par un multiplicateur d'électrons. L'hélium-4 est mesuré avec une cage de Faraday.

Les mesures sont calibrées à l'aide de standards d'air atmosphérique qui sont analysés quotidiennement et d'un gaz volcanique de rapport isotopique connu, analysé une fois par semaine. Pour ne pas contaminer la ligne de purification décrite ci-dessus, les échantillons suspectés d'être très riches en hélium-3 (prélèvements d'air de la chambre ou du tunnel après injection du traceur) ont d'abord été mesurés sur une ligne de purification simplifiée équipée d'un spectromètre de masse quadripolaire (QMS200, Pfeiffer). Les échantillons qui se sont révélés moyennement riches en hélium-3 ont ensuite été mesurés, après une importante dilution, par spectrométrie de masse à secteur magnétique à haute résolution (Noblesse, Nu Instruments).

E.2.3 Spectrométrie de masse à secteur magnétique : xénon atmosphérique

La mesure des isotopes stables du xénon est réalisée avec un spectromètre de masse à secteur magnétique, normalement développé pour le suivi de processus industriels (Prima Pro, Thermo Scientific). L'instrument récemment acquis par le CEA est caractérisé par une résolution plus élevée que les modèles standards (140 au lieu de 70), afin de pouvoir discriminer les différents isotopes du xénon. Cet instrument a un encombrement relativement réduit. Il peut être déplacé relativement facilement, et il fonctionne de manière autonome, sans craindre les variations de température ou de pression.

Le Prima Pro est un instrument très versatile, qui permet l'identification et la quantification d'un très grand nombre de composants de l'air. On s'intéresse aux gaz majeurs (N_2 , O_2 , CO_2), aux gaz rares (He, Ne, Ar, Kr, Xe) et aux deux gaz traceurs utilisés dans la chambre, SF_6 et R134a. On s'attache plus particulièrement à mesurer les 9 isotopes

stables du xénon.

L'instrument fonctionne en flux continu, avec un débit d'air d'environ 100 à 200 mL/min. Un dispositif d'introduction multi-voies permet l'analyse séquentielle de différents échantillons et de standards. L'échantillon est prélevé à pression atmosphérique. Un micro-capillaire réduit la pression de l'air de 1000 mbar à 1 mbar, puis un orifice de 70 μm réduit encore la pression à 10^{-4} mbar. Ce niveau de vide est nécessaire au fonctionnement de la source et des détecteurs.

Le principe de fonctionnement est ensuite identique à celui décrit dans le paragraphe précédent, avec une source à impact électronique, un secteur magnétique et des détecteurs. Le Prima Pro possède deux détecteurs, une cage de Faraday avec une limite de détection de l'ordre du ppm, et un multiplicateur d'électrons pour les mesures jusqu'à 10 ppb. Le Prima Pro permet l'identification des composés à partir du rapport masse/charge (m/z) des ions détectés, et des spectres de fragmentation existants dans les bases de données (base NIST par exemple). La gamme de mesure de l'instrument est de 0 à 200 amu. La quantification des concentrations est réalisée à partir de l'intensité des pics mesurés, par comparaison avec l'intensité des pics obtenus pour des gaz standards, de concentrations connues.

L'analyse des différents gaz mentionnés ci-dessus doit prendre en compte l'existence des différents ions produits dans la source pour chaque composé, et la possibilité d'interférences isobariques. Le SF_6 produit un fragment majoritaire à 127 amu, mais également des fragments moins abondants aux masses 128, 129 et 131, qui correspondent à des isotopes du xénon. La quantification précise du xénon demande donc de prendre en compte et corriger de la présence éventuelle de SF_6 dans l'air analysé.

Ce spectromètre de masse doit être mis en place à l'automne 2013 au Laboratoire Naturel de Roselend pour le suivi du traçage au xénon. Une étape préalable a consisté à caractériser ses performances au laboratoire, et à développer les protocoles d'analyse adaptés à la mesure au laboratoire Naturel de Roselend. Ce développement a été essentiellement réalisé dans le cadre du post-doctorat de Claire Gréau, en parallèle de la fin de cette thèse.

E.2.4 Spectrométrie de masse quadripolaire : constituants majoritaires de l'air, gaz rares, SF_6 , R134a

Pour l'analyse de la composition des composants majeurs et mineurs de l'air, une alternative au Prima Pro est un spectromètre de masse quadripolaire (UGA 200, Stanford Research Systems). Cet instrument est moins onéreux, moins encombrant, très facilement transportable sur le terrain. Il peut également être utilisé comme détecteur de fuites.

L'UGA 200 fonctionne en flux continu, l'échantillon étant prélevé par un capillaire qui permet de réaliser la réduction de pression nécessaire entre l'atmosphère et la chambre d'ionisation. La séparation des ions produits dans la source selon leur rapport masse/charge est réalisée par un quadripôle, constitué de 4 électrodes parcourues par des courants électriques variables. La gamme de mesure en masse est identique à celle du Prima Pro (0 à 200 amu). L'UGA 200 possède les deux mêmes détecteurs que ceux du Prima Pro.

L'avantage du quadripôle est sa rapidité de mesure et de vitesse de scan. Sa résolution et sa précision sont cependant moins bonnes que celles du Prima Pro. Une différence importante entre les deux instruments réside dans la forme des pics obtenus : ils sont arrondis avec le quadripôle, alors qu'ils ont un sommet plat avec le secteur magnétique. L'UGA 200 est ainsi moins stable, plus sensible aux fluctuations de l'échelle de masse.

L'UGA 200 doit être utilisé à Roselend pour le suivi en continu de la composition de la chambre C, mais ceci demande des développements instrumentaux pour automatiser les mesures et les calibrations.

E.3 Spectroscopie infrarouge

La mesure de la concentration en CO_2 dans l'air est réalisée par spectroscopie infrarouge. Au Laboratoire Naturel de Roselend, on utilise des analyseurs LI-820 (Li-Cor Biosciences) pour le suivi des concentrations en CO_2 dans le tunnel, dans la chambre et les mesures de flux dans les forages Perm, et un analyseur LI-8100 (Li-Cor Biosciences) pour la mesure des flux de CO_2 du sol.

Pour ces deux instruments, la mesure de la concentration en CO_2 est basée sur la différence d'absorption entre deux longueurs d'onde de l'infrarouge moyen : $4,26 \mu m$, qui correspond à une raie d'absorption du CO_2 , et $3,95 \mu m$ où le CO_2 n'absorbe pas. L'instrument est constitué d'un banc optique dans lequel l'air à analyser circule grâce à une pompe externe, d'une source IR large spectre, de deux ensembles filtre-détecteur pour mesurer l'intensité du rayonnement transmis aux deux longueurs d'ondes mentionnées.

En absence de CO_2 , les intensités des rayonnements mesurées par les deux détecteurs sont identiques. La présence de CO_2 diminue l'énergie du rayonnement infra-rouge détecté à la longueur d'onde à laquelle le CO_2 absorbe. La loi de Beer-Lambert indique que la baisse d'intensité, exprimée par l'absorbance A , est proportionnelle à la longueur du trajet optique L et à la concentration du gaz qui absorbe :

$$A = -\log \frac{I}{I_0} = \epsilon L [CO_2] \quad (25)$$

où I (resp. I_0) est l'intensité mesurée à la longueur d'onde où le CO_2 absorbe (resp. n'absorbe pas) et ϵ le coefficient d'absorption (en m^{-1}). En pratique, le coefficient de proportionnalité n'est pas connu *a priori*, et est déterminé par calibration de l'instrument. Pour cela, on mesure d'abord un gaz ne comportant pas de CO_2 , pour vérifier l'absence d'offset, puis un gaz contenant une concentration connue de CO_2 , pour déterminer le coefficient de calibration. Afin de garantir la stabilité et la justesse des mesures, la température de l'élément de mesure est réglée à $50^\circ C$, et la pression y est mesurée pour appliquer une correction sur la mesure de concentration.

La précision de mesure des instruments LI-820 et LI-8100 est de 3 %, dans une gamme de mesure de 0 à 20 000 ppm de CO_2 . Une calibration doit être réalisée au minimum une fois par an pour garantir leur justesse.

La technologie de mesure des isotopes stables du CO_2 présentée au Chapitre 3 est dérivée de la méthode présentée ci-dessus. Une raie d'absorption est mesurée pour chacun des isotopologues du CO_2 , à deux longueurs d'onde très proches. Le principe de

fonctionnement des instruments utilisés (DLT-100 et CCIA-EP, Los Gatos Research) est détaillé dans Guillon *et al.* (2012) (Chapitre 3).

E.4 Spectroscopie photo-acoustique

La spectroscopie photo-acoustique est utilisée pour une analyse rapide (quelques minutes) et *in situ* des concentrations en SF_6 et en R134a. Le laboratoire dispose de trois analyseurs Innova 1412 (LumaSense). La spectroscopie photo-acoustique offre de bonnes limites de détection et est sélective pour un grand nombre de molécules non symétriques (CO_2 , H_2O , CH_4 , N_2O , ...), ce qui exclut notamment N_2 , O_2 , et les gaz rares. L'instrument est de petite taille et léger (9 kg), et est facilement transportable. On dispose également d'un multiplexeur, qui permet d'analyser successivement jusqu'à 12 zones différentes (forages par exemple).

Une source lumineuse continue dans l'infrarouge proche est rendue intermittente (pulsée) grâce à un chopper. Elle est filtrée à une longueur d'onde spécifique de l'analyte à mesurer, puis envoyée dans une cellule de mesure étanche qui renferme le gaz. L'absorption intermittente par la molécule d'intérêt (selon la loi de Beer-Lambert énoncée ci-dessus) entraîne une variation périodique de la température dans la cellule de mesure, et donc une onde de pression, mesurée par des microphones. Une calibration permet de relier l'intensité de cette onde acoustique à la concentration en gaz. La calibration initiale des instruments reste stable pendant environ un an.

TABLEAU E.1 – Limites de détection et concentrations maximales mesurables avec les analyseurs photo-acoustiques Innova 1412, et lignes de base effectivement observées au Laboratoire Naturel de Roselend.

TABLE E.1 – *Detection limits and maximum concentrations that can be measured by photo-acoustic analyzers Innova 1412, and baseline values measured at the Roselend Natural Laboratory.*

	SF_6	R134a	CH_4	NH_3	CO_2	H_2O
Detection limit	6 ppb	10 ppb	0.1 ppm	0.2 ppm	5 ppm	50 ppm
Max. measurable conc.	0.6 % ⁽¹⁾ 50 % ⁽²⁾	1 %	10 %	10 %	100 %	99 %
Measured baseline	10 ppb	150 ppb	<20 ppm	0.9 ppm	30000 ppm	18000 ppm

⁽¹⁾ filter SF_6 , ⁽²⁾ filter NH_3

Chacun des 3 analyseurs dont on dispose est équipé de 6 filtres, qui sélectionnent des longueurs d'ondes différentes et permettent d'analyser les 6 gaz suivants : SF_6 , R134a, CO_2 , CH_4 , NH_3 et H_2O . Les limites de détection ainsi que les gammes de mesures sont indiquées dans le Tableau E.1.

Le choix des filtres et des longueurs d'onde utilisés pour mesurer les gaz d'intérêt doit être fait de manière raisonnée, en considérant les différentes espèces présentes, et les interférences possibles entre les pics d'absorption.

Le spectre d'absorption du SF_6 dans l'infrarouge (Figure E.1) présente un pic prin-

cial à 941 cm^{-1} qui coïncide avec un pic d'absorption de l'ammoniac (NH_3). S'il est présent, NH_3 interfère avec la mesure du SF_6 en donnant une concentration en SF_6 faussement trop élevée. Un filtre supplémentaire à 1020 cm^{-1} , longueur d'onde où NH_3 absorbe mais pas SF_6 , permet de corriger cette interférence sur la concentration observée en SF_6 , qui reste limitée car il ne semble pas y avoir de NH_3 à Roselend. L'instrument corrige automatiquement les interférences croisées entre les composés mesurés, à condition que les filtres nécessaires soient présents. Cette interférence SF_6 - NH_3 est mise à profit pour analyser le SF_6 dans une gamme de concentration beaucoup plus large. La concentration maximale mesurable passe ainsi de 0,6 % avec le seul filtre « SF_6 » à 50 % avec le filtre « NH_3 » (Tableau E.1).

Une interférence similaire existe entre le R134a et le protoxyde d'azote (N_2O), qui semble être produit en grandes quantités en certains endroits de la carrière suite à des épandages de fumier (Hassouna *et al.*, 2008). N_2O absorbe à la longueur à laquelle on mesure normalement R134a (1179 cm^{-1}). Nous ne disposons pas pour le moment d'un filtre spécifique (à 2150 cm^{-1}) pour N_2O permettant de corriger cette interférence. La ligne de base mesurée en R134a dans le forage de surface SCH1 est donc élevée, et très supérieure à la limite de détection théorique de l'analyseur photo-acoustique (Tableau E.1). Ceci empêche de détecter ce traceur au plus tôt de sa restitution, et augmente l'incertitude sur son temps d'apparition. Il est à craindre que les concentrations maximales atteintes en R134a lors de la restitution du traceur restent inférieures à la ligne de base observée sur le terrain, oblitérant ainsi l'usage de ce traceur pour les mesures réalisées en surface.

De plus, R134a présente un petit pic d'absorption à la longueur d'onde de 1020 cm^{-1} utilisée pour mesurer NH_3 . L'instrument mesurant une absorption à la longueur d'onde du R134a (due en fait à N_2O), il va effectuer une correction en diminuant l'absorption attribuée à NH_3 . Comme N_2O n'absorbe pas à la longueur d'onde de NH_3 et qu'il n'y a pas de NH_3 sur le site du Laboratoire Naturel de Roselend, la correction est appliquée à une valeur nulle et la concentration finale obtenue pour NH_3 peut devenir négative. Les teneurs en NH_3 affichées par l'analyseur, toutes comprises entre -0,9 et 0,9 ppm, sont donc un artefact confirmant la présence de protoxyde d'azote N_2O .

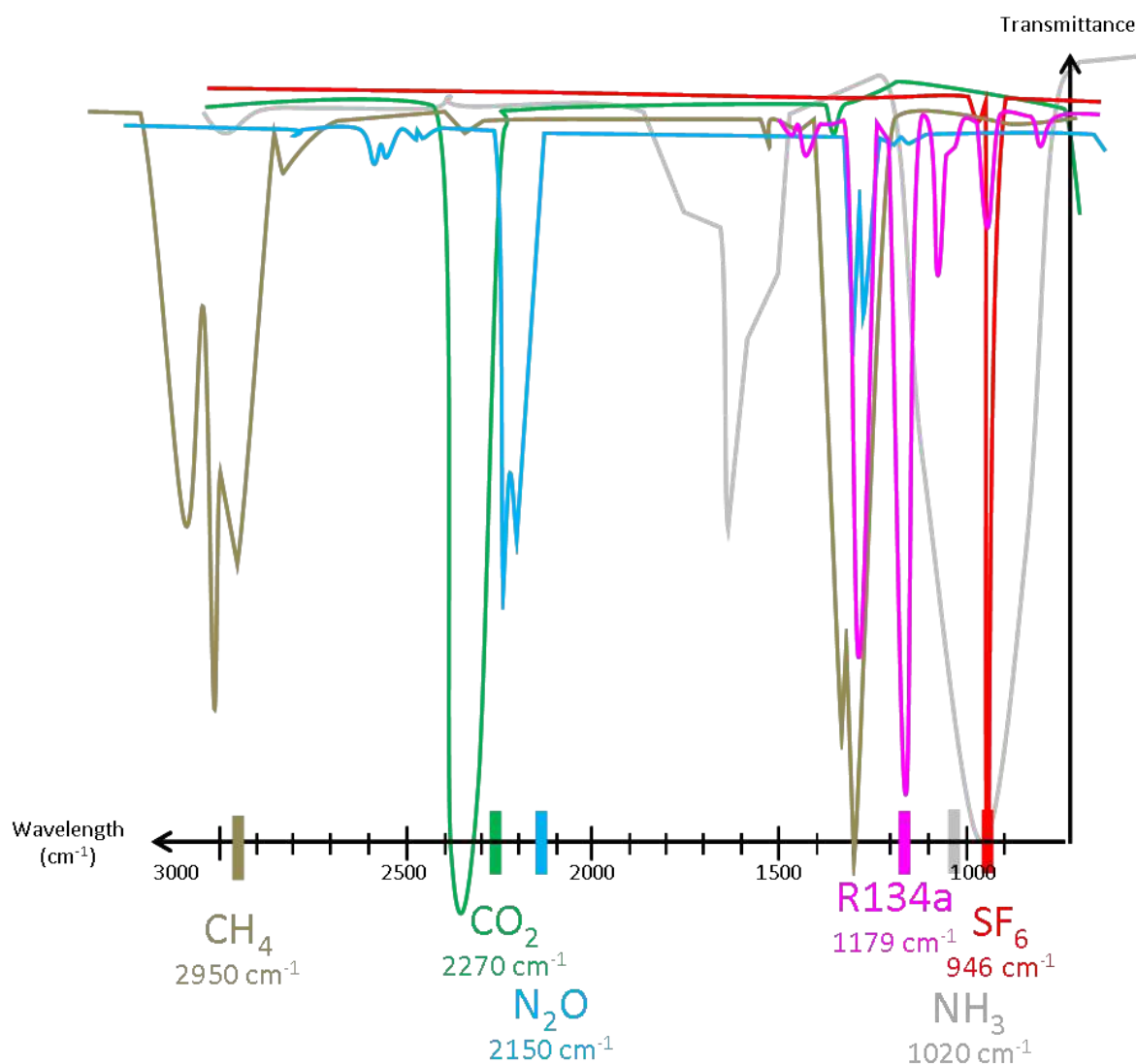


FIGURE E.1 – Spectres d’absorption dans l’infrarouge moyen et lointain des molécules mesurées par spectroscopie photo-acoustique dans l’air au Laboratoire Naturel de Roselend : CO_2 , SF_6 , R134a, CH_4 , N_2O , NH_3 . Les traits verticaux sur l’axe des abscisses indiquent les longueurs d’onde utilisées par les analyseurs photo-acoustiques pour la mesure de chacun des gaz. Les spectres sont adaptés de NIST (2013). Les filtres de sélection des longueurs d’onde des analyseurs photo-acoustiques Innova 1412 sont tirés de www.lumasenseinc.com (consulté le 28 novembre 2012).

FIGURE E.1 – Absorption spectra in the mid and far infrared for the gases measured by photo-acoustic spectroscopy at the Roselend Natural Laboratory : CO_2 , SF_6 , R134a, CH_4 , N_2O , NH_3 . Vertical lines on the horizontal axis indicate the wavelengths used by the photo-acoustic analyzers to measure each of the gases. Spectra are adapted from NIST (2013). The filters selecting wavelengths in the photo-acoustic analyzers are from www.lumasenseinc.com (visited on 11/28/2012).

F Quantification du taux de fuite d'une ligne de mesure

Aucun instrument ou ligne de mesure n'est jamais absolument étanche, et n'a pas besoin de l'être. Il suffit que le taux de fuite soit suffisamment faible pour que, selon les cas, la mesure soit représentative de l'échantillon analysé sans contamination par l'air extérieur, ou que la pression reste assez basse pour que l'instrument fonctionne.

Une fuite est définie par le transfert d'un volume de gaz qui entre ou sort du système de mesure. Les fuites ont lieu le plus souvent au niveau des tuyaux, des raccords et des vannes. La présence et la localisation des fuites d'une ligne de mesure peut se faire de manière qualitative : détection de la formation de bulles après aspersion d'un tensio-actif ou immersion dans l'eau d'un volume en surpression, détection de l'entrée d'hélium dans un volume sous vide.

La quantification de l'étanchéité passe par la mesure de la remontée (resp. la chute) de pression d'une ligne sous vide (resp. en surpression). Un taux de fuite de $1 \text{ mbar} \cdot \text{L} \cdot \text{s}^{-1}$ correspond à un transfert de gaz ayant entraîné une remontée (ou une chute) de pression de 1 mbar dans un volume de 1 litre en 1 seconde. C'est aussi égal au transfert d'un volume de gaz de 1 mL à pression atmosphérique en 1 seconde.

Dans le cadre de cette thèse, les taux de fuite des lignes d'injection des traceurs dans la chambre ainsi que du dispositif de prélèvement automatique d'échantillons pour la mesure de l'hélium-3 ont été quantifiés avec la méthode suivante : la pression dans la ligne à tester est abaissée à un vide relatif de quelques mbar à l'aide d'une pompe à diaphragme, puis la ligne est isolée du pompage et la remontée de la pression est mesurée. Le taux de fuite τ , en $\text{mbar} \cdot \text{L} \cdot \text{s}^{-1}$, s'exprime alors par :

$$\tau = V \frac{dP}{dt} \quad (26)$$

où V est le volume de la ligne testée (en L) et dP/dt l'augmentation mesurée de la pression dans la ligne (en mbar/s), déterminée par la pente à l'origine.

Un taux de fuite de $10^{-2} \text{ mbar} \cdot \text{L} \cdot \text{s}^{-1}$ représente l'étanchéité à l'eau liquide, $10^{-7} \text{ mbar} \cdot \text{L} \cdot \text{s}^{-1}$ représente l'étanchéité aux gaz.

Toutes les lignes et instruments ne peuvent pas être mis sous vide et cette méthode n'est pas toujours facile à mettre en œuvre. Une autre méthode est utilisée pour quantifier l'étanchéité des boucles de mesure des flux de gaz produits par le sol ou la roche qui comportent un analyseur de CO_2 (cf Chapitre 3). Après avoir purgé la ligne de mesure avec de l'air sans CO_2 , elle est isolée de l'extérieur (boucle fermée) et l'augmentation de la concentration en CO_2 y est mesurée. S'il existe une fuite, de l'air contenant du CO_2 va en effet être transféré depuis l'atmosphère vers l'intérieur de la ligne. Par analogie avec la définition présentée ci-dessus, le taux de fuite τ peut alors être exprimé par :

$$\tau = \frac{d[\text{CO}_2]}{dt} \frac{V P}{[\text{CO}_2]_{\text{atm}}} \quad (27)$$

où $d[\text{CO}_2]/dt$ est l'augmentation de la concentration mesurée par l'analyseur de CO_2 (en ppm/s), V est le volume de la ligne testée (en L), P est la pression dans la ligne (en mbar) et $[\text{CO}_2]_{\text{atm}}$ est la concentration en CO_2 dans l'atmosphère (en ppm). Cette méthode

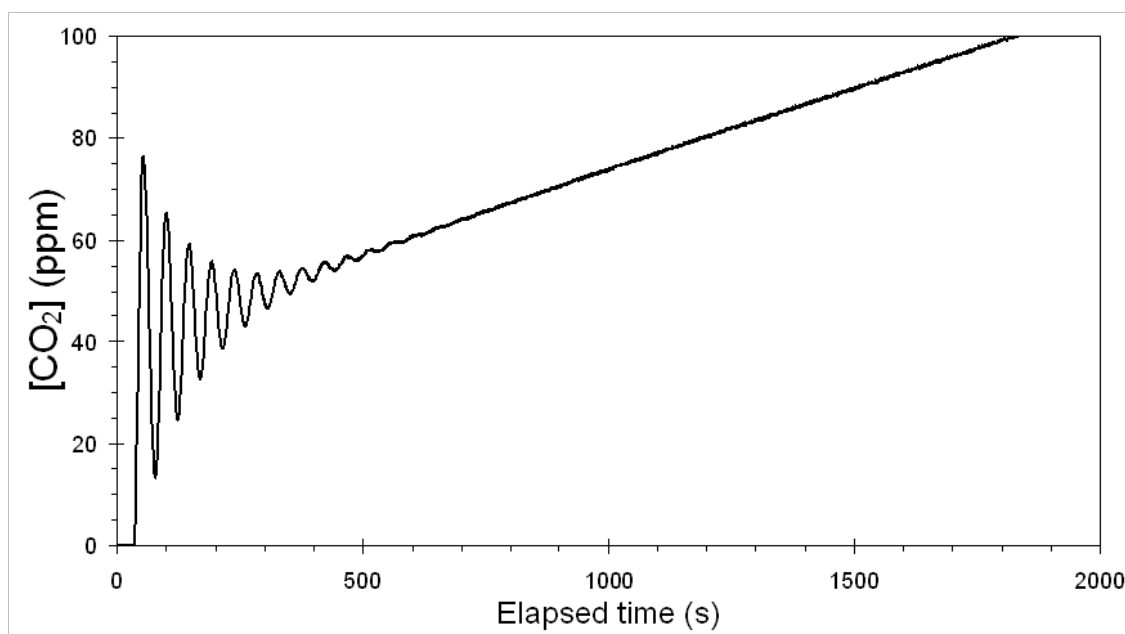


FIGURE F.1 – Concentration en CO_2 mesurée par l’analyseur CCIA-EP (Los Gatos Research) dans une boucle fermée après une purge avec de l’air sans CO_2 . L’augmentation linéaire de la concentration en CO_2 permet de quantifier le taux de fuite de la ligne et de l’instrument. Les oscillations observées pendant les 500 premières secondes sont interprétées par la présence de volumes morts non purgés, qui sont mobilisés lors du passage en boucle fermée.

FIGURE F.1 – CO_2 concentration measured by the CCIA-EP analyzer (Los Gatos Research) in a closed loop following a flush with CO_2 -free air. The linear increase of CO_2 concentration allows quantifying the leaking rate of the measurement line and analyzer. The oscillations observed during the first 500 seconds are due to dead volumes that can not be purged, and that are mobilized when switching to closed loop.

présente l’avantage de déterminer un taux de fuite dans les conditions de pression de travail de la ligne.

La Figure F.1 présente les résultats obtenus lors de la mesure du taux de fuite dans une ligne contenant uniquement l’analyseur laser de l’isotopie du CO_2 CCIA-EP (Los Gatos Research). Si la deuxième partie de la courbe montre bien l’augmentation linéaire attendue de la concentration en CO_2 due à l’existence d’une fuite, et permet de calculer le taux de fuite, des fluctuations de la concentration en CO_2 (selon une évolution de type sinus cardinal) sont observées dans les minutes qui suivent l’arrêt de la purge et le passage en circuit fermé. Des observations similaires ont été faites pour la concentration en CH_4 dans un forage du laboratoire de Bure (Cailteau *et al.*, 2011), et ont été interprétées comme le mélange progressif de deux gaz contenus dans deux volumes initialement séparés et mis en contact et homogénéisés avec une pompe de circulation. Les oscillations observées lors des mesures de taux de fuite correspondraient ainsi au mélange progressif de l’air sans CO_2 et de volumes morts qui n’ont pas été purgés et qui contiennent du CO_2 .